



Etude numérique de l'impact des effets densitaires et inertiels sur le transport en milieu chenalisé

Jeremy Bouquain

► To cite this version:

Jeremy Bouquain. Etude numérique de l'impact des effets densitaires et inertiels sur le transport en milieu chenalisé. Hydrologie. Université Rennes 1, 2012. Français. NNT: . tel-00825299

HAL Id: tel-00825299

<https://theses.hal.science/tel-00825299>

Submitted on 23 May 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE / UNIVERSITÉ DE RENNES 1
sous le sceau de l'Université Européenne de Bretagne

pour le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

Mention : Sciences de la Terre

Ecole doctorale Sciences de la Matière

présentée par

Jérémy Bouquain

préparée à l'unité de recherche UMR 6118 GR
Géosciences-Rennes
UFR Sciences et Propriétés de la Matière

**Etude numérique de
l'impact des effets
densitaires et
inertiels sur le
transport en milieu
chenalisé**

**Thèse soutenue à Rennes
le 12 Juillet 2012**

devant le jury composé de :

Frédéric DELAY

Professeur, Université de Strasbourg / *rapporteur*

Harold AURADOU

Directeur de recherche au CNRS, Université Paris
11 / *rapporteur*

Marco DENTZ

Professor, IDAEA-CSIC / *examineur*

Diogo BOLSTER

Assistant Professor, University of Notre Dame /
examineur

Philippe DAVY

Directeur de recherche au CNRS, Université de
Rennes 1 / *directeur de thèse*

Yves MEHEUST

Maître de conférence, Université de Rennes 1 /
co-directeur de thèse

Table des matières

Introduction générale	2
1 Ecoulement et transport en milieu souterrain	5
1.1 Les milieux d'écoulement - Notions d'échelle	6
1.2 Lois d'écoulement monophasique dans les milieux poreux	8
1.2.1 Echelle microscopique - Equation générale	8
1.2.2 Echelle microscopique - Ecoulement lent	9
1.2.3 Ecoulement en fracture lisse - Ecoulement de Poiseuille	10
1.2.4 Ecoulement à l'échelle de Darcy	11
1.2.5 Ecoulement à l'échelle hydrodynamique et effets inertiels dans les pores	13
1.3 Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux	14
1.3.1 Processus physiques à l'échelle hydrodynamique	14
1.3.2 Equation générale du transport - ADE	17
1.3.3 Dispersion d'un soluté	18
1.3.3.1 Caractérisation	18
1.3.3.2 Phénomènes contribuant à la dispersion	19
1.3.4 Solutions et validité de l'ADE	21
1.3.4.1 Milieux poreux homogène et infini	21
1.3.4.2 Plaques parallèles - Dispersion de Taylor-Aris	22
1.4 Transport monophasique - Effets de flottabilité	25
1.4.1 Définition	25
1.4.2 Prise en compte de la variabilité spatiale de la masse volumique - Effets densitaires	25
2 Méthodes de résolution numérique	29
2.1 Resolution en éléments finis	30
2.1.1 Méthode des éléments finis	30
2.1.2 Les conditions aux limites	32
2.1.3 Le maillage	32
2.2 Simulation du transport passif par marche aléatoire	33

2.2.1	Principe	34
2.2.2	Algorithme de calcul et résolution	35
3	Impact des effets densitaires sur le transport dans une fracture plane	37
3.1	Ecoulement dans une fracture lisse tridimensionnelle – Approximation 2D .	38
3.2	Transport en fracture 2D avec couplage densitaire	38
3.2.1	Modèle	39
3.2.2	Loi d'échelle, nombres adimensionnels et plages de paramètres . . .	40
3.2.3	Analyse qualitative	41
3.2.4	Analyse quantitative	45
3.2.5	Nombre de Péclet limite	46
3.3	Discussion et conclusions	47
	Annexe : "Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts"	49
4	Impact des effets inertiels sur le transport d'un soluté passif dans un chenal d'ouverture périodique	65
4.1	Justification du choix de la géométrie	66
4.1.1	Description de la géométrie d'un chenal d'ouverture périodique . . .	66
4.1.2	Autres géométries similaires	68
4.2	Ecoulement lent dans un chenal d'ouverture périodique - Solution analytique	68
4.3	Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement	70
4.3.1	Modèle	70
4.3.2	Plages de paramètres étudiées	71
4.3.3	Analyse qualitative	73
4.3.4	Analyse quantitative	80
4.3.5	Modèle conceptuel équivalent à nombre de Reynolds élevé	82
4.4	Conclusion	83
	Annexe : "The impact of inertial effects on solute dispersion in a channel with periodically-varying aperture"	85
5	Impact des effets densitaires sur le transport dans un chenal d'ouverture périodique	109
5.1	Modèle	110
5.2	Etude qualitative	111
5.3	Conclusions	115
6	Lois d'échelle - Situations pratiques	117
6.1	Conditions d'écoulement dans un chenal idéalisé	118

Table des matières

6.2	Situations pratiques dans lesquelles les effets inertiels et densitaires sont significatifs	119
6.2.1	Effets densitaires	120
6.2.2	Effets inertiels	121
6.3	Cas réels	122
6.3.1	Effets densitaires dans une fracture lisse	122
6.3.2	Effets inertiels dans un milieu fracturé	122
6.4	Conclusions	123
Conclusions et perspectives		125
Bibliographie		131

Introduction générale

L'écoulement et le transport dans les milieux hétérogènes a principalement lieu dans des chenaux d'écoulement préférentiels. Selon la nature de la roche, ces zones peuvent être des fractures, des zones dissoutes (type karst) ou simplement des zones où l'agencement et la taille des grains permettent des vitesses d'écoulement plus élevées. La nature hétérogène du milieu implique qu'il est nécessaire de parfaitement connaître la géométrie du milieu et son évolution spatiale pour en déduire le champs des vitesses d'écoulement ainsi que les paramètres de transport. Dans la pratique, des hypothèses fortes sont faites et on cherche à définir des paramètres équivalents permettant de simplifier le modèle tout en représentant le fonctionnement macroscopique du système le plus fidèlement possible. Par exemple, Darcy nous a montré que l'on peut efficacement caractériser l'écoulement d'un point à un autre dans un milieu homogène avec uniquement un paramètre intrinsèque au milieu (sa perméabilité) et une observable locale (le gradient de charge moyen entre les deux points). Toutefois, cette approche n'est valide qu'à partir d'une certaine échelle.

La prédiction du transport de soluté dans les milieux fracturés est difficile car le modèle est souvent ambitieux. L'objectif est de quantifier le plus précisément possible l'impact du milieu sur le comportement d'un fluide s'y écoulant ainsi que sur celui d'un soluté y étant transporté. Classiquement, une des principales difficultés est d'obtenir des modèles mathématiques à même de prendre en compte efficacement l'hétérogénéité du milieu, cette dernière pouvant fortement impacter les processus physiques ayant lieu dans le milieu. L'efficacité du modèle est quantifiée par la qualité de ses résultats ainsi que les temps de simulation associés. Le manque d'informations (principalement géométriques) et la complexité des calculs conduisent à simplifier le modèle en faisant des hypothèses fortes, par exemple : (i) on cherche à rendre le milieu moins hétérogène, par exemple en définissant des fractures d'ouverture constante (ii) on néglige tout effet lié aux gradients de masse volumique induit, la plupart du temps, par la présence d'un soluté ou par des gradients de température.

Comme l'a remarqué *Simmons* (2005), les situations pour lesquelles la densité du fluide doit être prise en compte sont nombreuses. Cela concerne souvent l'écoulement d'eau salée dans les aquifères, mais également les essais de traçage, le transport d'un polluant dense, le transport dans la zone vadose, entre autres. Un nombre important d'études utilisant des techniques de traçages sont menées dans des situations où les effets densitaires peuvent avoir un impact significatif. Pourtant, les auteurs font la plupart du temps l'hypothèse que ces effets sont négligeables devant les autres phénomènes. Au delà de la validité de l'hypothèse, ce choix est souvent fait car on ne dispose souvent pas de solution analytique ou pour éviter de compliquer les modèles numériques et d'alourdir les calculs.

Les objectifs de cette thèse sont de mieux caractériser les phénomènes classiquement négligés dans les modèles. Pour cela, on s'attache à les étudier à l'échelle microscopique et on caractérise les effets afin de pouvoir les prendre en compte lors du changement d'échelle. Plus spécifiquement, on s'intéresse aux effets densitaires dans un chenal lisse

puis d'ouverture variable ainsi qu'aux effets inertiels dans un chenal d'ouverture variable.

Le manuscrit aborde ces problématiques à travers 6 chapitres :

- Le chapitre 1 est consacré à l'état des lieux des connaissances concernant l'écoulement et le transport d'un soluté.
- Le chapitre 2 présente les modèles et les méthodes numériques utilisés pour leur résolution.
- Dans le chapitre 3, on étudie l'écoulement et le transport dans des chenaux/fractures lisses d'ouverture uniforme. On y aborde principalement l'impact de la prise en compte des effets de flottabilité dans ce type de géométrie.
- Le chapitre 4 est dédié à l'étude de l'écoulement et du transport dans un chenal d'ouverture variable dans des conditions d'écoulement avec effets inertiels.
- Le chapitre 5 décrit qualitativement l'impact de la prise en compte des effets densitaires sur l'écoulement et le transport dans un chenal d'ouverture variable.
- Enfin, le chapitre 6 synthétise tous les effets étudiés dans la thèse et les place dans un contexte pratique. On s'y intéresse aux plages de paramètres pour lesquelles les effets inertiels et densitaires pourraient avoir un impact significatif dans une situation réelle.

Formalisme mathématique

	Variable	Dimension	Unité usuelle
ρ	Masse volumique du fluide	$[M.L^{-3}]$	$g.L^{-1}$ ou $kg.m^{-3}$
η	Viscosité dynamique du fluide	$[M.L^{-1}.T^{-1}]$	$Pa.s$ ou $kg.m^{-1}.s^{-1}$
ν	Viscosité cinématique du fluide	$[L^2.T^{-1}]$	$m^2.s^{-1}$
t	Temps	$[T]$	s
\mathbf{u}	Vecteur vitesse du fluide	$[L.T^{-1}]$	$m.s^{-1}$
u_x, u_y et u_z	Composantes de la vitesse du fluide	$[L.T^{-1}]$	$m.s^{-1}$
u, v	Composantes de la vitesse en 2D exactement équivalentes à u_x et u_y	$[L.T^{-1}]$	$m.s^{-1}$
p	Pression	$[M.L^{-1}.T^{-2}]$	Pa
C	Concentration en soluté	$[M.L^{-3}]$	$g.L^{-1}$ ou $kg.m^{-3}$
C_0	Concentration en soluté au temps initial	$[M.L^{-3}]$	
D_m	Coefficient de diffusion moléculaire	$[L^2.T^{-1}]$	$m^2.s^{-1}$
D_a	Coefficient de dispersion apparente	$[L^2.T^{-1}]$	$m^2.s^{-1}$
$D_{T.A.}$	Coefficient de dispersion de Taylor-Aris	$[L^2.T^{-1}]$	$m^2.s^{-1}$
$b = \bar{h}$	Demi-ouverture moyenne d'un chenal	$[L]$	m
$h(x)$	Demi-ouverture locale d'un chenal	$[L]$	m
h'	Amplitude maximum de variation d'ouverture	$[L]$	m
ϵ	Rapport d'aspect d'un chenal sinusoïdal	$[]$	-
a	amplitude relative des variations d'ouverture	$[]$	-

TABLE 1 – Formalisme mathématique

Chapitre 1

Écoulement et transport en milieu souterrain

Dans ce premier chapitre, nous définissons la problématique et présentons l'état actuel des connaissances concernant l'écoulement et les transferts d'éléments en solution dans les milieux géologiques. Nous présentons les hypothèses des approches classiquement utilisées et en pointons certaines limites. A partir de cet état des lieux, nous introduisons les différentes approches suivies dans cette thèse qui permettent de prendre en compte certains phénomènes classiquement négligés.

1.1 Les milieux d'écoulement - Notions d'échelle

Les aquifères sont avant tout des roches constituées de grains et de pores ayant subi différents processus d'altération. L'eau ou tout autre fluide est stockée et/ou s'écoule entre les grains. L'agencement et les caractéristiques géométriques des pores déterminent toutes les propriétés hydrauliques du milieu. Comme illustré dans la figure 1.1, ces formations géologiques peuvent présenter une structure hétérogène sur une large gamme d'échelles. Cette hétérogénéité est héritée de différents processus ayant conduit à plusieurs types de porosité. Tout d'abord, lors de la formation de la roche, une porosité intergranulaire se forme. Par la suite, des processus de dissolution ou de dépôt contribuent à respectivement agrandir ou réduire les pores initiaux. Dans certains cas, la dissolution est telle que des chenaux de taille importante se forment ; c'est notamment le cas des karsts. Enfin, des événements tectoniques peuvent provoquer l'apparition de fractures.

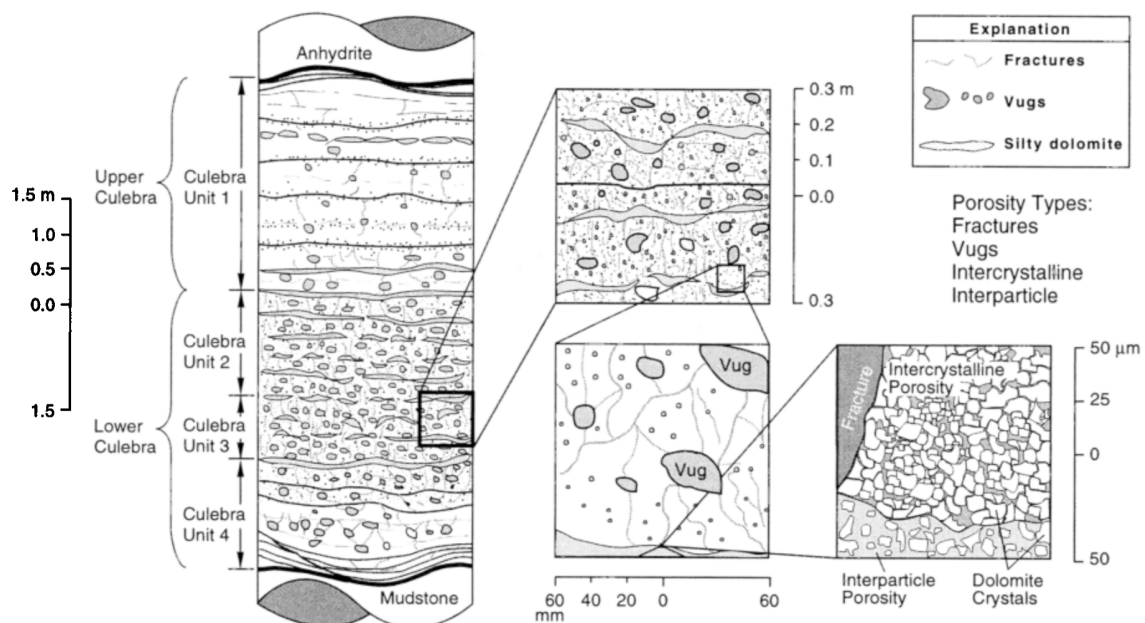


FIGURE 1.1 – Schéma des différentes lithologies et des types de porosité sur le site de Culebra (USA) d'après *Meigs and Beauheim* (2001).

Avant tout, la circulation de l'eau nécessite une connexion entre les vides. Ensuite, plus la taille des vides est importante, mieux l'eau circule. On caractérise la capacité du milieu à laisser passer un fluide par sa perméabilité. Les milieux réels sont, hormis quelques exceptions, tous hétérogènes. L'écoulement se localise dans des chenaux d'écoulement préférentiel interconnectés. Cette répartition hétérogène des flux est une conséquence directe de l'hétérogénéité du champ de perméabilité. La figure 1.2 montre un modèle conceptuel d'une zone fracturée. La fracture est constituée d'un chenal principal d'ouverture variable. Une couche très perméable constitue les parois de la fracture avec par endroits de la micro-fracturation.

Un enjeu de l'hydrogéologie est de parvenir à obtenir une description la plus précise

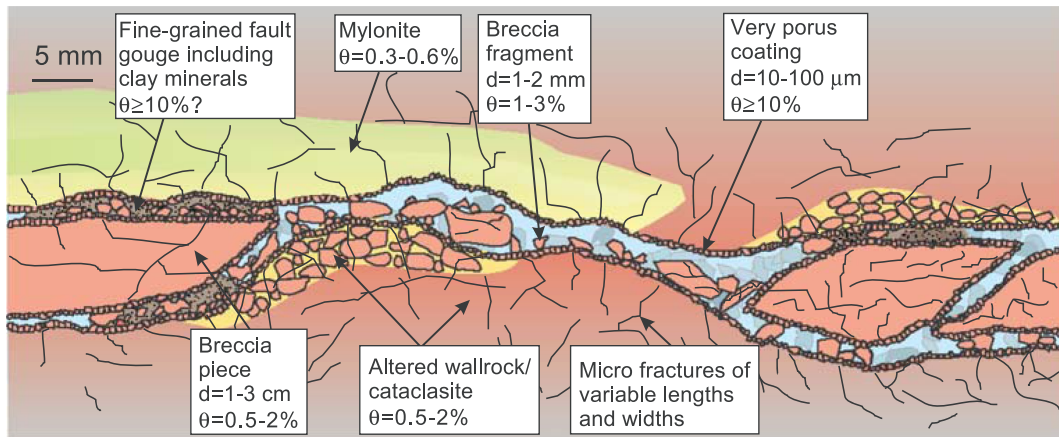


FIGURE 1.2 – Schéma conceptuel d'une fracture dans la diorite d'Äspö d'après *Andersson et al.* (2004).

possible des aquifères pour qu'il soit possible de modéliser les processus s'y déroulant. Pour cela, on détermine une échelle d'étude puis on définit les propriétés du milieu. Dans la plupart des cas, l'échelle d'étude est déterminée par la problématique et par les ressources autant techniques (en termes de mesures in situ) que numériques disponibles. Pourtant, l'échelle d'observation permettant de différencier spatialement les hétérogénéités est une donnée du milieu étudié. Il faut donc être aussi en mesure de passer d'une description à une échelle à une autre.

L'échelle microscopique permet de décrire le système en détaillant totalement les pores ou les chenaux. On l'appelle aussi échelle hydrodynamique car les écoulements y sont décrits par la mécanique des fluides standard. Une telle description est idéale, mais les difficultés d'observation in situ des systèmes naturels imposent une simplification du système. On définit un volume élémentaire représentatif (VER) afin de décrire les propriétés locales du milieu (qui est un système physique discret) dans un nouveau système continu. Cette transition est détaillée dans la figure 1.3. Dans un tel système, la complexité des conditions aux limites aux échelles inférieures au VER est supprimée, permettant l'utilisation de calculs différentiels pour décrire les processus s'y déroulant. De plus, les équations aux dérivées partielles ne sont en général pas les mêmes à l'échelle hydrodynamique et à l'échelle du VER. La taille caractéristique du VER (son rayon) doit valider deux conditions :

- elle est suffisamment grande pour lisser les hétérogénéités. Elle sera très supérieure à la taille des pores afin d'éviter des fluctuations du paramètre dans l'espace.
- elle est suffisamment petite pour garder la variabilité macroscopique du paramètre étudié. Ces variations spatiales restent au plus proche des fonctions continues.

Le VER est un bon moyen de déterminer l'échelle d'étude. Toutefois, celle-ci dépend du paramètre étudié. Par exemple, si on choisit une échelle où la porosité est correctement moyennée en gardant la variabilité macroscopique, il est possible qu'il n'en soit pas de

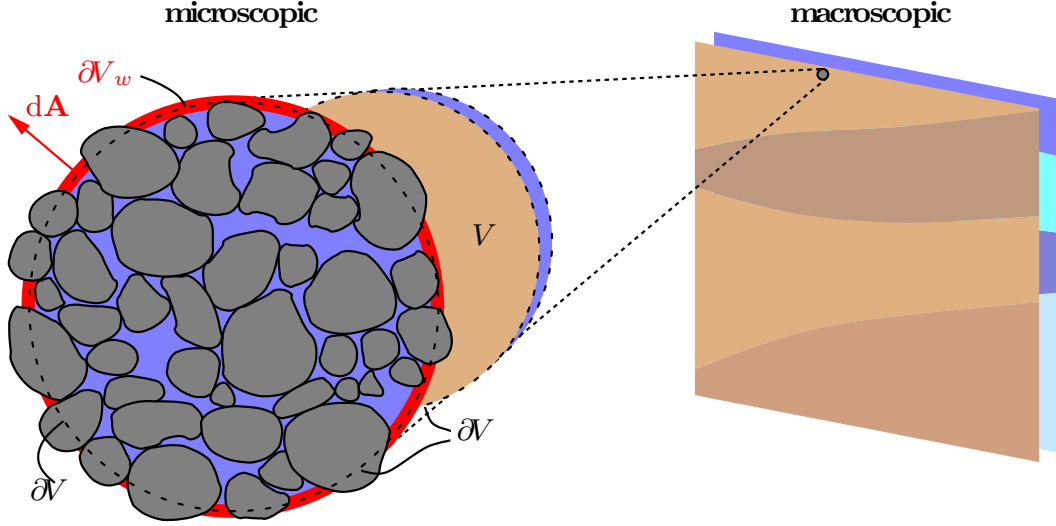


FIGURE 1.3 – Transition de l'échelle microscopique (l'échelle du pore) à la représentation continue (macroscopique) d'après Roth (2007). On considère un volume V dont la frontière est ∂V . A l'échelle microscopique, la distribution détaillée des phases est complète. Le volume d'eau $V_w \subset V$ a pour limites $\partial V_w \subset \partial V$ (représentées par les lignes rouges). A l'échelle macroscopique, toutes les phases et toute autre information sont remplacées par une superposition de champs continus (zones de couleur uniforme). Les valeurs des champs varient dans l'espace uniquement à une échelle supérieure à la taille de V .

même pour la perméabilité.

1.2 Loïs d'écoulement monophasique dans les milieux poreux

1.2.1 Echelle microscopique - Equation générale

L'écoulement d'un fluide newtonien incompressible est régi par l'ensemble d'équations (1.1) et (1.2). L'équation de continuité (conservation de la masse) est :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (1.1)$$

avec \mathbf{u} le champ de vitesse et ρ la masse volumique du fluide. Elle traduit que, pour tout volume de fluide considéré, les variations temporelles de la masse du fluide sont compensées par le bilan des flux entrants et sortants. L'équation de Navier-Stokes est :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = \rho \mathbf{g} - \nabla p + \eta \nabla^2 \mathbf{u} \quad (1.2)$$

avec \mathbf{g} l'accélération de la pesanteur et η la viscosité dynamique du fluide. Elle traduit le principe fondamental de la dynamique appliqué à une particule fluide : la variation temporelle de quantité de mouvement d'une particule fluide (termes de gauche) est égale

à la somme des forces appliquée (termes de droite). Les différents termes sont :

1. $\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t}$: Il représente la variation temporelle du champ de vitesse (terme *non stationnaire*) et est égal à 0 en condition d'écoulement stationnaire.
2. $\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla)\mathbf{u}$: Il est contrôlé par les variations spatiales de vitesse et est proportionnel à l'accélération du fluide par convection ou, en d'autres termes, la convection de la quantité de mouvement. C'est donc un terme *inertiel*. Il est non linéaire car il fait intervenir la vitesse au carré.
3. $\rho \mathbf{g}$: Ce sont les forces volumiques extérieures. Nous considérons uniquement la gravité, donc à la fois du champ de pesanteur \mathbf{g} et de la masse volumique du fluide ρ . Ces forces sont à l'origine des effets *densitaires* (i.e. elles influencent l'écoulement dès qu'il y a une hétérogénéité de la masse volumique, par exemple à cause de la présence d'un soluté).
4. $-\nabla p$: Il représente la résultante des forces de pression. Le gradient de pression est le moteur principal de l'écoulement.
5. $\eta \nabla^2 \mathbf{u}$: Il rend compte de la dissipation d'énergie par *frottement visqueux*, i.e. de la diffusion de la quantité de mouvement. Ce terme intervient principalement lorsque le cisaillement est localement important, par exemple près d'une paroi.

Le ratio entre les termes 2 et 5 permet de définir des régimes d'écoulement (i.e. convection ou diffusion de la quantité de mouvement). Le nombre de Reynolds est défini comme le rapport de leurs ordres de grandeur :

$$Re = \frac{\rho u_c^2}{\eta u_c / L} = \frac{\rho L u_c}{\eta} \quad (1.3)$$

avec u_c la vitesse typique de l'écoulement et L sa taille caractéristique. Lorsque $Re \gg 1$, les frottements visqueux deviennent négligeables (le fluide est qualifié de parfait) et les termes inertiel deviennent prépondérants. Lorsque $Re \ll 1$, les frottements visqueux sont dominants, les termes inertiel et instationnaire sont négligeables. L'écoulement laminaire qui en résulte est qualifié d'écoulement de Stokes.

Dans la pratique, le cisaillement et donc la dissipation par frottement visqueux est induit par les conditions aux limites de non-glissement. A l'interface entre le fluide et le solide, leurs composantes doivent être égales. Ce phénomène agit directement sur le terme 5 et, par diffusion de la quantité de mouvement, impacte le champ de vitesse dans le tout le fluide.

1.2.2 Echelle microscopique - Écoulement lent

On considère que l'écoulement vérifie les conditions de Stokes (équ. 1.4) lorsque :

- le fluide est incompressible (la masse volumique ρ est constante)
- l'écoulement est stationnaire ($\partial \mathbf{u} / \partial t = \mathbf{0}$)

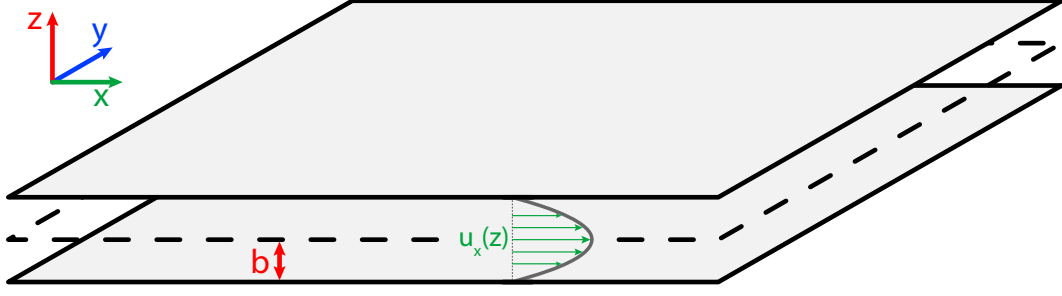


FIGURE 1.4 – Schéma du modèle de fracture plane constituée de deux plaques parallèles. Le fluide s'écoule selon la direction x . b est la demi-ouverture et $z = 0$ à l'équidistance des deux plaques. Les deux plaques sont donc placées à $z = b$ et $z = -b$.

- les forces extérieures sont négligeables
- les forces visqueuses dominant sur les effets inertiels (le nombre de Reynolds est faible)

Ces conditions sont rencontrées lorsque l'écoulement est lent, le liquide très visqueux et les dimensions caractéristiques du milieu très petites. Ces conditions sont couramment rencontrées dans les milieux poreux. Dans cette situation l'énergie apportée par le gradient de pression est uniquement dissipée par frottement visqueux. L'équation de Navier-Stokes est ainsi réduite à l'équation de Stokes :

$$\nabla p = \eta \nabla^2 \mathbf{u} \quad (1.4)$$

1.2.3 Ecoulement en fracture lisse - Ecoulement de Poiseuille

Une géométrie constituée de deux plaques parallèles est illustrée en figure 1.4. Cette géométrie est classiquement utilisée comme modèle équivalent à une fracture lisse d'ouverture $2b$. L'écoulement s'effectue parallèlement aux parois dans la direction des x positifs lorsque le gradient de pression est négatif. Au niveau des parois, une condition de non-glissement est appliquée. Ainsi, les composantes du vecteur vitesse dans les directions y et z sont égales à 0 :

$$u_y = u_z = 0 \quad (1.5)$$

Si on considère une géométrie infinie, la vitesse d'écoulement est invariante selon la direction y . On peut alors réduire l'étude du système à un domaine à 2 dimensions. Dans un tel domaine, l'équation de Stokes s'écrit :

$$\frac{\partial p}{\partial x} = \eta \frac{\partial^2 u_x}{\partial z^2} \quad (1.6)$$

La double primitive selon z donne :

$$u_x = \frac{1}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial x} z^2 + C_1 z + C_2 \quad (1.7)$$

A partir des conditions aux limites de vitesse nulle au niveau des parois :

$$u_x(z = b) = u_x(z = -b) = 0 \quad (1.8)$$

on détermine les expressions des constantes d'intégration :

$$C_1 = 0 \quad \text{et} \quad C_2 = -\frac{1}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial x} b^2 \quad (1.9)$$

D'où un profil parabolique de vitesse :

$$u_x = -\frac{b^2}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial x} \left(1 - \frac{z^2}{b^2}\right) \quad (1.10)$$

On peut en déduire les expressions de la vitesse moyenne et de la vitesse maximale :

$$\max(u_x) = -\frac{b^2}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (1.11)$$

$$\bar{u}_x = -\frac{b^2}{3\eta} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (1.12)$$

On remarque que $\max(u_x) = \frac{3}{2}\bar{u}_x$.

1.2.4 Ecoulement à l'échelle de Darcy

Comme on l'a expliqué dans le paragraphe 1.1 page 6, si on souhaite étudier les phénomènes à une échelle au-delà de quelques mètres, il n'est plus possible d'appliquer directement les équations définies à l'échelle microscopique. En effet, la géométrie du milieu est mal connue (ou la résolution est trop faible) et lorsqu'elle l'est, les calculs nécessaires sont hors de portée des systèmes de calcul actuellement à notre disposition. Les propriétés de l'écoulement monophasique sont moyennées dans un Volume Elementaire Représentatif.

Le chevalier Henry Darcy a établi expérimentalement une loi reliant la vitesse d'un écoulement monophasique (dans un milieu homogène) à un gradient de charge hydraulique par une relation linéaire (*Darcy* (1856)) :

1.2. Lois d'écoulement monophasique dans les milieux poreux

$$\mathbf{Q} = -K A \nabla h \quad (1.13)$$

avec Q [$m^3.s^{-1}$] le débit, K [$m.s^{-1}$] la conductivité hydraulique, A [m^2] la section au travers de laquelle l'eau s'écoule et ∇h le gradient de charge hydraulique. La charge hydraulique est reliée à la pression p et l'altitude z : $h = p/\rho g + z$. La vitesse moyenne obtenue Q/A (ou vitesse de Darcy) correspond à celle d'un écoulement homogène traversant l'ensemble du volume du milieu (y compris la phase solide) avec le même débit que celui de l'écoulement réel. Elle est liée à la vitesse moyenne réelle d'écoulement par la porosité. On peut également écrire la loi de Darcy en terme de pression :

$$\mathbf{u} = -\frac{k}{\eta} \nabla p \quad (1.14)$$

avec k la perméabilité intrinsèque, proportionnelle à la conductivité hydraulique : $k = K\eta/\rho g$. La perméabilité intrinsèque dépend uniquement du milieu alors que la conductivité hydraulique dépend également du fluide le traversant.

En faisant un changement d'échelle de l'échelle microscopique à l'échelle de Darcy sur les équations de l'hydrodynamique, il est possible de retrouver de manière théorique la loi de Darcy. *Whitaker* (1986) l'a démontré dans le cas général en utilisant la méthode de *volume averaging*. On peut d'ailleurs retrouver la loi de Darcy à partir de l'équation de Stokes dans une géométrie simple telle celle utilisée dans la section 1.2.3 (constituée de deux parallèles). On définit L_y la largeur de la fracture dans la direction y . Le débit volumique est obtenu par intégration de la vitesse dans l'espace. Cela conduit à la loi cubique :

$$Q = \int_0^{L_y} \int_{-b}^b u_x dy dz = -L_y \frac{2b^3}{3\eta} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (1.15)$$

On remarque que la relation entre la vitesse moyenne (Q/L_y) et le gradient de pression est linéaire. On peut comparer cette notation à celle de l'équation de Darcy écrite en terme de pression :

$$\mathbf{Q} = -\frac{K}{\rho g} L_y 2b \nabla p \quad (1.16)$$

On identifie alors que la conductivité hydraulique est proportionnelle au carré de l'ouverture de la fracture :

$$K = \frac{\rho g b^2}{3\eta} \quad (1.17)$$

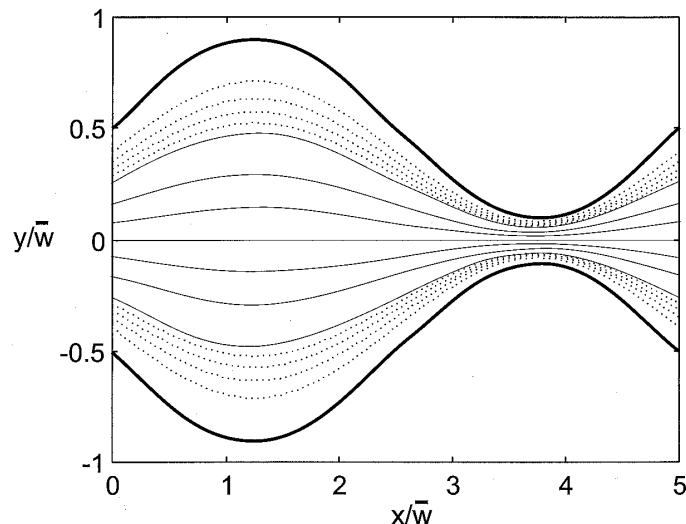


FIGURE 1.5 – Lignes d'écoulement dans un chenal 2D sinusoïdal, d'après *Kitanidis and Dykaar* (1997).

1.2.5 Écoulement à l'échelle hydrodynamique et effets inertiels dans les pores

En première approximation, on peut considérer qu'un milieu poreux homogène contient des grains sphériques, de granulométrie uniforme, empilés régulièrement. Dans ce type de modèle, on peut réduire l'étude à un volume qui permet, après réplique/translation dans les 3 dimensions, de totalement représenter le milieu infini. Par exemple, si on considère un empilement cubique, le VER sera un cube de taille identique au cube dont les sommets sont les centres des 8 grains environnant un pore. On peut définir ce volume de plusieurs façons, mais il faut respecter le principe de périodicité.

Afin d'étudier des phénomènes à petite échelle, tels que le développement d'un biofilm, et afin d'avoir un modèle le plus simple possible, on peut encore simplifier le volume élémentaire choisi et le transposer dans un système à 2 dimensions. Par exemple, on peut représenter le système 2D par un chenal dont l'ouverture est une fonction sinusoïdale, comme illustré en figure 1.4. Les hypothèses sont fortes, mais on peut obtenir une analyse qualitative et quantitative des processus qui pourra ensuite être étendue au problème en 3 dimensions. On peut aussi estimer que les hypothèses de granulométrie uniforme et de grains sphériques en empilement régulier sont encore plus déterminantes et que le passage en 2D n'est pas critique.

Écoulement lent

Hasegawa and Izuchi (1983) puis *Kitanidis and Dykaar* (1997) se sont intéressés à l'écoulement dans un chenal d'ouverture variable dont les parois ont une forme sinusoïdale. En partant de la formulation en fonction de courant de l'équation de Stokes en 2D et en

1.3. Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux

utilisant une expansion en série en terme du rapport d'aspect du milieu, ils ont obtenu une solution analytique approchée du champ de vitesse . Toutefois, cette solution n'est valide que lorsque le rapport d'aspect est suffisamment petit. La méthode et son applicabilité sont discutées dans la section 4.2, page 68.

Ecoulement avec effets inertiels

Chaudhary et al. (2011) ont testé la validité de la loi de Darcy lorsque l'écoulement s'accélère et que les effets inertiels deviennent significatifs. Des zones de recirculation apparaissent alors dans l'espace poral. Ils ont effectué des simulations en 3D dans un pore en résolvant l'équation de Navier-Stokes. Ils montrent qu'au delà d'une vitesse seuil, la conductivité hydraulique apparente (K_a) devient dépendante de la vitesse d'écoulement. En effet, la croissance de la zone de recirculation réduit la taille du chenal d'écoulement, induisant une baisse de la conductivité hydraulique équivalente. Le régime d'écoulement change et suit alors la loi définie par Forchheimer où la relation entre gradient de charge et vitesse n'est plus linéaire :

$$\frac{Q}{A} = \frac{1}{a + b \frac{Q}{A}} \nabla h \quad (1.18)$$

avec a et b les coefficients du fit polynomial. Ils permettent de définir la conductivité hydraulique apparente : $K_a = 1 / (a + b Q/A)$.

1.3 Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux

1.3.1 Processus physiques à l'échelle hydrodynamique

Le transport de soluté regroupe plusieurs processus physiques :

- l'advection
- la diffusion
- les phénomènes de sorption
- les phénomènes de production/dégradation conduisant à l'apparition ou à la disparition de soluté (tels les réactions chimiques ou la décroissance radioactive)

On considérera un soluté non-réactif qui ne subit pas d'effets de sorption. Les deux derniers types de processus sus-cités ne seront donc pas abordés.

Advection

L'advection est le déplacement du soluté par le fluide. Connaissant le champ de vitesse \mathbf{u} , une particule de soluté, situé à la position $\mathbf{x}(t)$ au temps t , sera au temps $t + \Delta t$ à

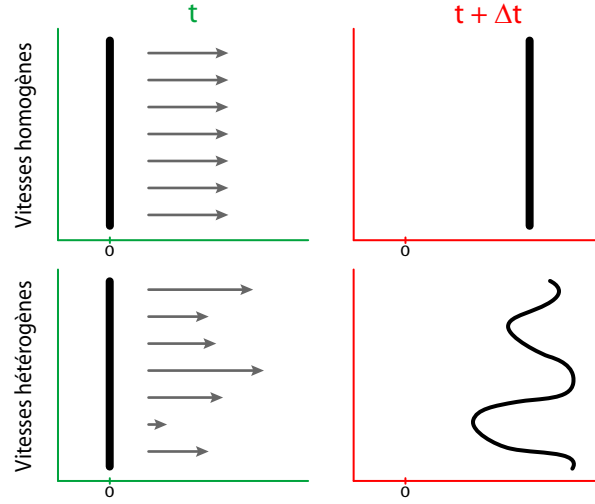


FIGURE 1.6 – Evolution temporelle d’une ligne de soluté par advection pure lorsque le champ de vitesse (indiqué par les flèches grises) est uniforme (ligne supérieure) et lorsque celui-ci est non-uniforme (ligne inférieure).

la position $\mathbf{x}(t + \Delta t) = \mathbf{x}(t) + \mathbf{u}\Delta t$ (si ∇t est suffisamment petit). Lors de l’advection pure par un écoulement incompressible, un nuage de soluté est déplacé, et étiré si la vitesse n’est pas uniforme, mais ni le volume contenant le soluté, ni la concentration ne changent. La figure 1.6 illustre le transport par advection pure. Lorsque le champ de vitesse est hétérogène, la ligne est déformée. Sa longueur est alors plus importante mais cette augmentation est compensée par un affinement, le volume occupé reste le même.

Le flux massique d’un soluté se déplaçant par advection est obtenu à partir de la concentration du soluté et de la vitesse :

$$\mathbf{F} = \mathbf{u}C \quad (1.19)$$

Pour calculer l’évolution du champ de concentration au cours du temps, on combine l’équation 1.19 avec la conservation de la masse. On obtient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{F} = -(\mathbf{u} \cdot \nabla) C \quad (1.20)$$

Diffusion

L’agitation thermique des atomes et molécules est un mouvement incessant, d’autant plus énergétique que la température est élevée. Ce mouvement brownien tend à homogénéiser spatialement la concentration d’un soluté. Les lois de Fick décrivent ce phénomène appelé diffusion. La 1ère loi de Fick définit le flux massique diffusif comme proportionnel au gradient de concentration et tendant à réduire les hétérogénéités :

$$\mathbf{F} = -D_m \nabla C \quad ; \quad \text{en 1D : } F_x = -D_m \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1.21)$$

1.3. Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux

Il dépend du gradient de concentration (C) ainsi que de D_m le coefficient de proportionnalité appelé coefficient de diffusion moléculaire. On définit qu'un processus suivant cette loi (au coefficient de proportionnalité près) est un processus dit Fickien. En condition de température standard, un soluté diffusera donc toujours de la zone la plus concentrée à la zone la moins concentrée. Dans un domaine fini, lorsque que la concentration devient uniforme, il n'y a plus de gradient de concentration. les flux diffusifs sont alors nuls. Pourtant, les particules continuent d'être agitées mais les nombres de particules entrant et sortant d'un volume donné sont identiques. Pour calculer l'évolution du champ de concentration au cours du temps, on combine la 1ère loi de Fick et la conservation de la masse. On obtient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{F} = \nabla \cdot (D_m \nabla C) \quad (1.22)$$

La variation de masse de soluté dans un volume élémentaire est simplement la somme des variations (i.e. la divergence) des flux dans chacune des dimensions. Les variations de D_m dans l'espace sont en général négligeables, on obtient alors :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_m \nabla^2 C \quad ; \quad \text{en 1D} : \frac{\partial C}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1.23)$$

Einstein (1956) a montré que le coefficient de diffusion moléculaire D_m dépend de la température T (en kelvin), de la viscosité dynamique η et du rayon de la particule de soluté r (en mètres) :

$$D_m = \frac{k_b T}{6\pi\eta r} \quad (1.24)$$

avec k_b la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$). On remarque que plus la température est élevée ou plus le rayon de la particule est faible, plus le coefficient est élevé.

La figure 1.7 détaille l'évolution d'un nuage de soluté s'étalant par diffusion. Pour cet exemple, on considère un milieu 1D. Au temps initial t_0 , le soluté a la forme d'un créneau et la concentration moyenne est de 1. De part et d'autre du nuage, le gradient de concentration est important (infini dans ce cas particulier). Le soluté va alors commencer à diffuser. Le nuage occupe un espace de plus en plus important au cours du temps ($t_2 > t_1 > t_0$) et la concentration moyenne diminue. S'il n'y a aucun obstacle, la distribution spatiale de la concentration en soluté tend vers une gaussienne, quelle que soit la forme initiale du nuage lors de l'injection.

On mesure l'étalement du nuage en utilisant la variance (ou moment centré d'ordre 2) calculée à partir du champ de concentration. Dans un système 2D (de dimensions x et y), la variance longitudinale s'écrit :

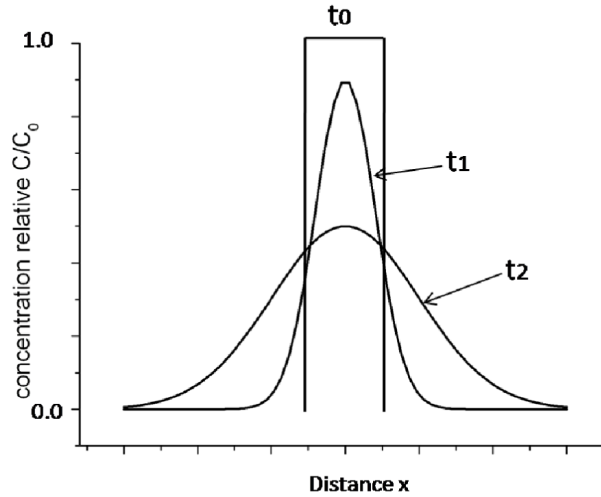


FIGURE 1.7 – Diffusion 1D d'un soluté au cours du temps, d'après *Fetter* (2001).

$$\mathcal{V}_x(t) = \frac{1}{M} \iint_{\Omega} (x - x_G)^2 C(x, y, t) dx dy \quad (1.25)$$

avec x_G la position du centre de masse (ou moment d'ordre 1) :

$$x_G(t) = \frac{1}{M} \iint_{\Omega} x C(x, y, t) dx dy \quad (1.26)$$

La racine carré de la variance donne l'écart-type σ . Cet écart-type permet d'évaluer facilement l'extension spatiale du soluté. Sous l'hypothèse que la distribution de la concentration est gaussienne, 99,7% du soluté est situé entre les positions $x_G - 3\sigma$ et $x_G + 3\sigma$. La dérivée de la variance est un bon indicateur de la vitesse à laquelle le nuage de soluté s'élargit. C'est ainsi qu'on mesure le coefficient de diffusion moléculaire D_m :

$$D_m = \frac{1}{2} \frac{d\mathcal{V}_x}{dt} \quad (1.27)$$

A partir de D_m , il est donc possible d'évaluer, par exemple, quelle est la largeur l du volume dans lequel on retrouvera 99,7% du soluté au temps t :

$$l = 6 \left(\sqrt{\mathcal{V}_x(t=0)} + \sqrt{2D_m t} \right)$$

1.3.2 Equation générale du transport - ADE

A l'échelle hydrodynamique (microscopique), la concentration d'un soluté vérifie l'équation d'advection-diffusion (Advection diffusion equation -ADE- en anglais). Celle-ci combine les termes liés à l'advection et à la diffusion :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -(\mathbf{u} \cdot \nabla) C + D_m \nabla^2 C \quad (1.28)$$

1.3. Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux

Cette loi n'est valide que lorsque le soluté est non-réactif et qu'il n'y a pas de phénomène de sorption. Elle sous-tend que le processus de diffusion est fickien. Pour distinguer un transport plus diffusif d'un autre plus advectif, on utilise le nombre de Péclet, défini comme le ratio entre les ordres de grandeur des termes advectifs et des termes diffusifs :

$$Pe = \frac{[-(\mathbf{u} \cdot \nabla) C]}{[D_m \nabla^2 C]} = \frac{L_c u_c}{D_m} \quad (1.29)$$

avec u_c une vitesse typique de l'écoulement et L_c une longueur caractéristique du système. Dans une fracture, on peut utiliser par exemple l'ouverture et la vitesse moyenne d'écoulement :

$$Pe = \frac{2b \bar{u}}{D_m} \quad (1.30)$$

1.3.3 Dispersion d'un soluté

1.3.3.1 Caractérisation

Le processus de dispersion regroupe tout processus contribuant à l'étalement du soluté. A l'échelle de Darcy, les observations ont permis de constater que, dans beaucoup de situations, on peut représenter l'élargissement du nuage de soluté par un processus Fickien. La dispersion du soluté suit alors un processus analogue à celui de la diffusion que l'on peut décrire par les mêmes équations. Le coefficient de proportionnalité utilisé devient le coefficient de dispersion apparente D_a et l'équation de transport s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -(\mathbf{u} \cdot \nabla) C + \nabla \cdot (D_a \nabla C) \quad (1.31)$$

Tout comme le coefficient de diffusion, le coefficient de dispersion apparente est mesuré à partir de la variance du nuage de soluté (ici dans la direction x) :

$$D_a(t) = \frac{1}{2} \frac{d\mathcal{V}_x}{dt} \quad (1.32)$$

Dans la plupart des modèles de transport actuels, l'hypothèse de dispersion fickienne est utilisée, l'ADE est donc l'équation de base du transport. On note que D_a est rarement isotrope. Le coefficient de dispersion est alors sous forme tensorielle et est conservé dans le terme de divergence.

Même si la distribution spatiale n'est pas gaussienne, le coefficient de dispersion reste un indicateur simple de l'étalement du soluté. Toutefois, il n'apporte pas toujours une description suffisante du mélange. L'étude des phénomènes provoquant l'étalement est indispensable si on souhaite évaluer la pertinence de l'utilisation seule du coefficient de dispersion.

1.3.3.2 Phénomènes contribuant à la dispersion

La figure 1.8 montre une particule fluide dans un champ de vitesse hétérogène ainsi que l'évolution de la vitesse au cours de son déplacement. La vitesse est parfois inférieure et parfois supérieure à la vitesse moyenne de l'écoulement. Cette variabilité fait que certaines particules prennent de l'avance ou du retard par rapport à d'autres. Cela induit un étalement des molécules de soluté, mais ne contribue pas directement à la dilution du soluté. Ce processus est appelé étalement (« spreading ») dans la littérature.

Le cadre supérieur gauche de la figure 1.9 illustre également le « spreading ». La figure représente les positions de particules transportées dans une fracture lisse. Au temps initial, les particules sont réparties uniformément sur une ligne verticale. Ensuite, elles subissent le profil parabolique des vitesses et la diffusion. L'écoulement s'effectue de gauche à droite. Aux temps courts, la ligne est étirée et déformée. La distance selon x entre la première particule et la dernière particule augmente. Pourtant, le volume occupé par le soluté ne change pas.

Ensuite, la diffusion moléculaire contribue à ce que les particules s'éloignent les unes des autres. Cette dilution induit une baisse des concentrations et une augmentation du volume occupé par le soluté. Mais ces mouvements de particules font aussi qu'elles sautent d'une ligne de courant à une autre. Cette combinaison entre diffusion et advection provoque une dilution encore plus importante. Dans la figure 1.9, aux temps plus longs (i.e. dans le cadre inférieur droit), la diffusion et l'advection tendent à se combiner et provoquer une dispersion longitudinale. Ce phénomène de dilution est caractérisé par le fait que la concentration du soluté tend à s'homogénéiser dans l'espace. La dilution regroupe tous les processus conduisant directement ou indirectement à cette homogénéisation. Le « spreading » est donc un des processus de la dilution.

Les concepts et distinctions entre « spreading » et dilution sont détaillés par *Kitanidis* (1994) et *Dentz and Carrera* (2007). Kitanidis montre aussi que le coefficient de dispersion ne permet pas toujours de rendre compte correctement de la dilution. Il propose un « dilution index » permettant de mieux rendre compte de l'état réel de la dilution :

$$E(t) = \exp \left[- \int C(\mathbf{x}, t) \ln(C(\mathbf{x}, t)) dV \right]$$

Cet indicateur est particulièrement important pour des processus qui peuvent être limités par la qualité de la dilution ou, si on s'intéresse à plusieurs solutés distincts, la qualité du mélange. Par exemple, c'est le cas pour les réactions entre solutés.

L'origine de l'hétérogénéité des vitesses et l'impact de la diffusion diffèrent selon l'échelle à laquelle on les considère :

- A l'échelle microscopique, la présence de grains et la faible taille des pores induit toujours une hétérogénéité du champ de vitesse. En effet, comme illustré dans la

1.3. Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux

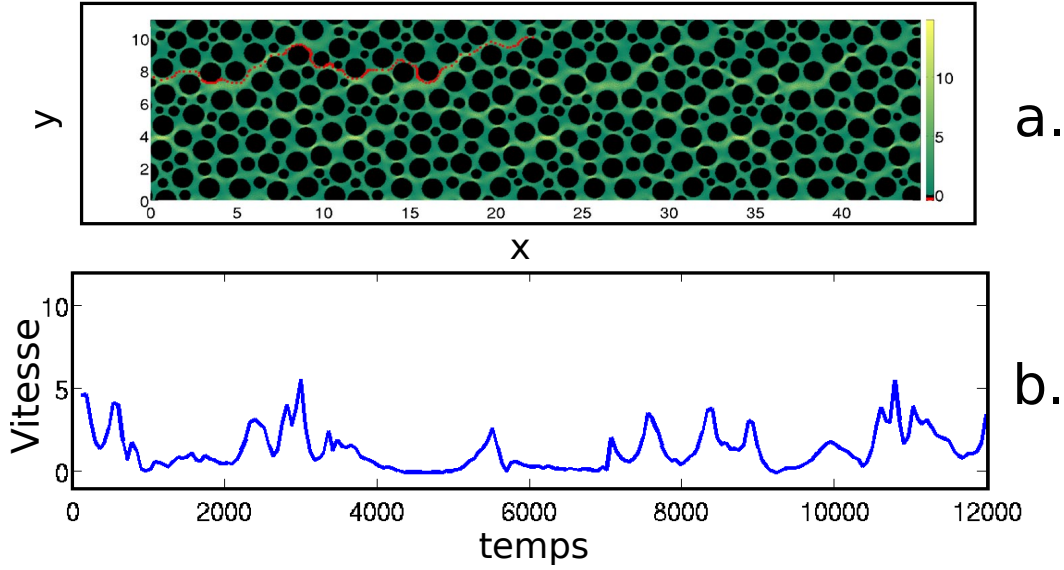


FIGURE 1.8 – Advection pure d'une particule dans un milieu poreux. En (a), le chemin de la particule est représenté en rouge et le champ de vitesse du vert au jaune pour des vitesses de la plus faible à la plus élevée, respectivement. En (b), évolution de la norme de la vitesse de la particule le long de sa trajectoire entre sa première et sa dernière position. D'après les travaux de *De Anna* (2012).

figure 1.8, la vitesse tend vers 0 à l'interface avec les grains et est maximale au centre des pores, avec un profil de vitesse souvent parabolique similaire à celui décrit en section 1.2.3. La micro-dispersion est liée à la géométrie locale du milieu traversé, mais il est important de noter qu'elle résulte de l'interaction entre l'advection non-uniforme (liée à la géométrie) et la diffusion (liée au soluté).

- A l'échelle de Darcy, l'hétérogénéité du champ de vitesse est directement liée à l'hétérogénéité du champ de conductivité hydraulique (qui, pour rappel, est issu de l'intégration spatiale des propriétés du milieu aux échelles inférieure à l'échelle de Darcy). Le fluide contourne les zones les moins perméables, provoquant alors la division du nuage de soluté dans des zones de vitesses parfois très différentes. A une telle échelle, bien supérieure à l'échelle de diffusion, aucun autre processus que l'advection ne pourra contribuer autant à disperser le soluté. Même dans des roches jugées homogènes, la majorité de l'écoulement s'effectue souvent principalement dans des chenaux légèrement plus perméables. A l'échelle du terrain, la macro-dispersion est quasi-systématiquement liée au champ de perméabilité.

Dans un milieu poreux, à l'échelle microscopique, les grains empêchent physiquement la diffusion au travers d'eux-mêmes. Celle-ci est donc réduite par rapport à la diffusion dans un grand volume de fluide. Lorsqu'on souhaite représenter le processus diffusif à l'échelle de Darcy, on utilise alors un coefficient de diffusion effective D_e à la place de D_m :

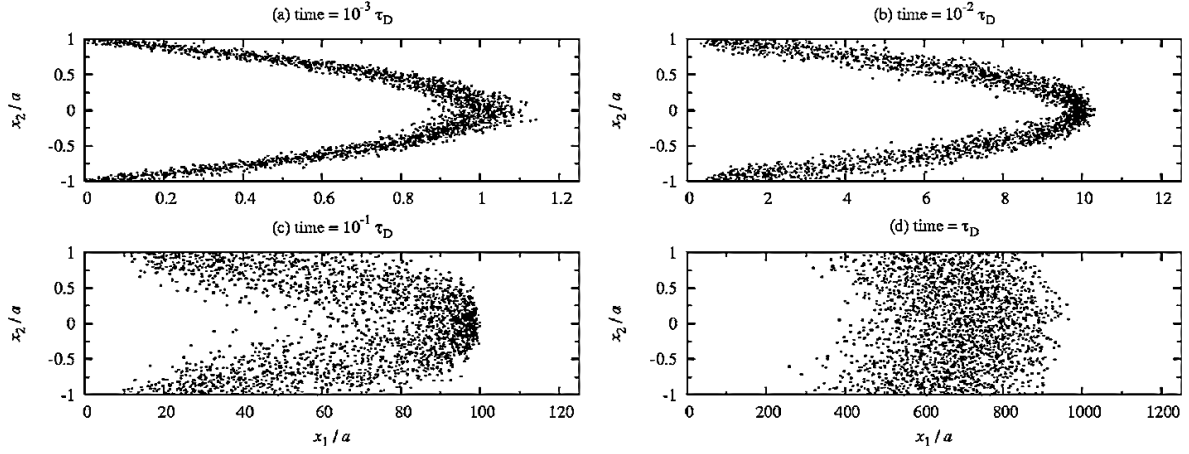


FIGURE 1.9 – Spreading et mixing dans une fracture lisse. Au temps initial, le soluté est injecté sur une ligne verticale. D’après *Dentz and Carrera (2007)*.

$$D_e = F_f D_m \quad (1.33)$$

où F_f est un facteur de formation. Il dépend du milieu poreux car il représente le ratio entre la distance entre 2 points à vol d’oiseau et la distance réelle que doit parcourir la particule en contournant les grains.

1.3.4 Solutions et validité de l’ADE

1.3.4.1 Milieux poreux homogène et infini

On s’intéresse au transport d’un soluté à l’échelle de Darcy dans un milieu poreux tridimensionnel, homogène et infini. On considère un écoulement dans la direction x de vitesse uniforme ($u_x = cste$). L’injection du soluté est instantanée et ponctuelle dans l’espace. La solution de l’ADE à un temps t correspond à une distribution dont les sections dans les directions x , y et z sont gaussiennes :

$$C(x, y, z, t) = \frac{M}{8(\pi t)^{3/2} \sqrt{D_x D_y D_z}} \exp \left(-\frac{(x - x_G)^2}{4D_x t} - \frac{(y - y_G)^2}{4D_y t} - \frac{(z - z_G)^2}{4D_z t} \right) \quad (1.34)$$

avec M la masse de soluté injecté et D_x , D_y et D_z les coefficients de dispersion dans les directions x , y et z . x_G , y_G et z_G sont les positions selon x , y et z (respectivement) du centre de gravité du nuage. Ce dernier suit l’écoulement, il évolue donc à la vitesse de l’écoulement u_x . Ainsi, on peut écrire $x_G = u_x t$ et $y_G = z_G = 0$.

Les hypothèses faites pour obtenir cette solution sont très fortes. Une faible hétéogénéité du milieu (et de la conductivité hydraulique) peut induire des différences de vitesse importantes et un effet de chenalisation. L’utilisation d’une vitesse uniforme dans tout le milieu est donc très discutable.

1.3.4.2 Plaques parallèles - Dispersion de Taylor-Aris

Considérons une ligne de soluté présente à un temps initial t_0 dans une fracture plane. Les étapes de dispersion sont illustrées en figure 1.10 et l'évolution au cours du temps du coefficient de dispersion est montrée dans la figure 1.11. Aux temps courts ($\sim t_0$), l'action du profil parabolique des vitesses (étudié en section 1.2.3) ne se fait pas encore sentir. Seule la diffusion moléculaire agit. Celle-ci induit uniquement un flux diffusif longitudinal car le gradient de concentration est longitudinal. Cela signifie que la variance de la concentration ne grandit que sous la seule action de la diffusion. Le coefficient de dispersion est alors égal au coefficient de diffusion moléculaire. Cela correspond à l'asymptote dans la figure 1.11 lorsque $\tau < 1 \cdot 10^{-5}$ (i.e. $t = t_c/10^5$). Aux temps suivants (t_1), le profil parabolique commence à déformer la ligne. Il provoque un étalement du soluté par cisaillement. La valeur du coefficient de dispersion augmente. La diffusion ne disperse plus le soluté uniquement longitudinalement, il y a également une composante transverse. Ainsi, la diffusion tend à homogénéiser le nuage dans la direction transverse. Une fois cette homogénéisation totale (t_2 ou $\tau > 1$), le nuage continue à se disperser sous les effets combinés de la diffusion et du profil parabolique des vitesses, mais la déformation en parabole n'est plus visible. Le coefficient de dispersion apparente longitudinal D_a se stabilise à une valeur constante et devient indépendant du temps, le régime asymptotique est atteint.

En d'autres termes, chaque particule de soluté peut se déplacer par diffusion d'une ligne d'écoulement à une autre. La déformation en parabole du champ de concentration ne subsiste que tant que les particules n'ont pas expérimenté tout le profil de vitesse. A partir du temps t_c , le régime asymptotique est atteint, le transport de soluté est alors régi par une équation ADE unidimensionnelle.

Le soluté avance à la vitesse moyenne de l'écoulement. Cela sous-tend que le fluide au milieu de la fracture (en $z = 0$) avance plus rapidement que le nuage, il le traverse et voit sa concentration augmenter puis diminuer. A contrario, le fluide s'écoulant près des parois avance plus lentement que le nuage de soluté.

Taylor (1953, 1954a,b) a, le premier, publié des travaux portant sur l'étude de la dispersion d'un soluté dans un tube. *Aris* (1956) a ensuite complété ses travaux. Ils ont montré que le régime asymptotique est atteint après un temps caractéristique t_c proportionnel au carré de la demi-ouverture et à l'inverse du coefficient de diffusion moléculaire :

$$t_c = \frac{b^2}{D_m} \quad (1.35)$$

Au delà de ce temps, le transport de soluté est contrôlé par l'ADE en 1D avec le coefficient de dispersion apparente s'écrivant :

$$D_a = D_{T.A.} = D_m + \beta \frac{\bar{u}^2 b^2}{D_m} \quad (1.36)$$

avec β un coefficient contrôlé par la géométrie du chenal. *Wooding* (1960) a étendu la théorie à une géométrie à deux plaques parallèles. Il a établi que dans ce cas :

$$\beta = \frac{2}{105}$$

d'où :

$$D_a = D_{T.A.} = D_m + \frac{2}{105} \frac{\bar{u}^2 b^2}{D_m} \quad (1.37)$$

avec \bar{u} la vitesse moyenne, b la demi-ouverture et D_m le coefficient de diffusion moléculaire. Le coefficient de dispersion varie comme b^2 et u^2 . Or, comme détaillé dans la section 1.2.3, pour un gradient de charge donné, la vitesse moyenne est proportionnelle à b^2 . Le coefficient de dispersion est donc très sensible à l'ouverture car proportionnel à b^6 .

Berkowitz and Zhou (1996) ont étudié théoriquement le régime préasymptotique et ont obtenu une solution analytique caractérisant l'évolution du coefficient de dispersion apparente au cours du temps :

$$D_a(t) = D_m + \frac{\bar{u}^2 b^2}{D_m} \left[\frac{2}{105} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{18}{(n\pi)^6} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D_m}{b^2} t\right) \right] \quad (1.38)$$

Avant que le temps caractéristique du régime asymptotique ne soit atteint, le coefficient de dispersion, et donc la pente de la variance (sa dérivée), est fonction du temps. Cela signifie que la relation variance-temps n'est pas linéaire. Ce régime est non-Fickien.

A partir de la théorie de dispersion de Taylor-Aris, on peut donc obtenir une solution au transport dans une fracture plane. Comme on l'a vu, à l'échelle de Darcy, le transport est un processus 1D à deux paramètres : une vitesse moyenne et un coefficient de dispersion. Après une injection ponctuelle (au temps initial $t = 0$), si on se place dans un repère centré sur une position avançant à la vitesse moyenne \bar{u} (i.e. centré sur la position $x_G = \bar{u}t$ dans le repère établi au temps initial), le nuage de soluté a une distribution spatiale gaussienne :

$$C(x, t) = \frac{M_0 x}{2bL_y \bar{u} t \sqrt{4\pi D_a t}} \exp\left(-\frac{(x - \bar{u}t)^2}{4D_a t}\right)$$

avec D_a le coefficient de dispersion apparente, \bar{u} la vitesse moyenne, M_0 la masse de soluté injectée et L_y la largeur de la fracture.

1.3. Transport monophasique d'un soluté passif dans les milieux poreux

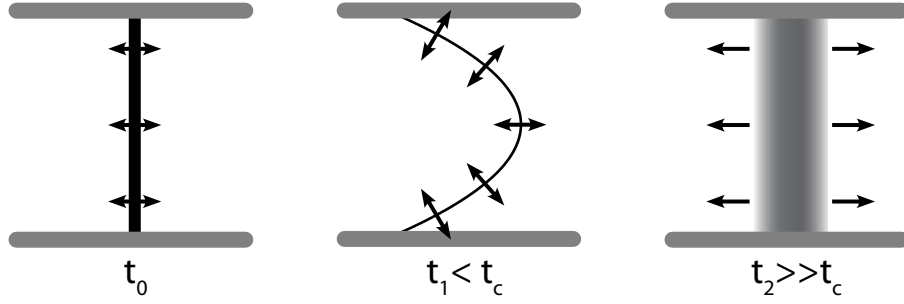


FIGURE 1.10 – Diffusion et étirement par advection d'une ligne de soluté

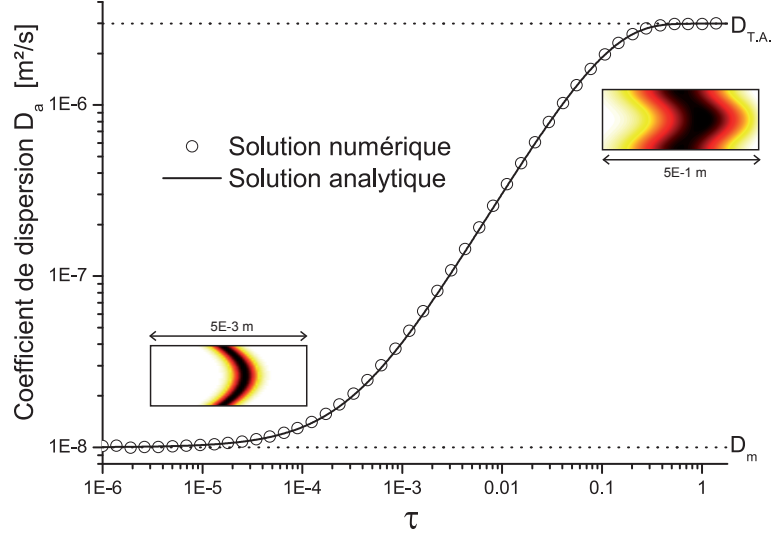


FIGURE 1.11 – Evolution pré-asymptotique de la valeur du coefficient de dispersion calculé à partir de la solution analytique (équ. 1.38) ainsi que par une méthode numérique. Les encarts sont des exemples de champs de concentration visibles aux temps courts et longs. τ est le temps adimensionné par t_c (i.e. $\tau = t/t_c$). D'après *Bouquain et al. (2011)*, l'article est en annexe du chapitre 3.

1.4 Transport monophasique - Effets de flottabilité

1.4.1 Définition

Les effets de flottabilité sont des mouvements induits par une hétérogénéité du champ de masse volumique dans le milieu. Les zones où la densité est la plus faible auront tendance à s'élever (dans la direction opposée à l'accélération de la gravité) au-dessus des zones les plus denses. La figure 1.8 illustre qualitativement cet effet. La présence du soluté modifie localement le champ de masse volumique. Cela provoque une perturbation de l'écoulement. Dans le même système, la vitesse verticale serait nulle en tout point s'il n'y avait pas d'effet gravitaire.

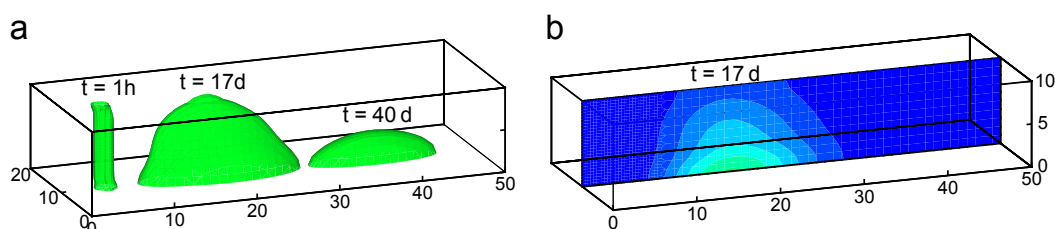


FIGURE 1.12 – Evolution spatiale d'un nuage de soluté après son injection dans un puits recoupant un milieu poreux homogène. (a) isosurfaces de la concentration $0,025\text{g.L}^{-1}$ et (b) coupe longitudinale du champ de concentration. L'injection de soluté est de $3,6\text{ kg/h}$ pendant 1h. D'après *Beinhorn et al.* (2005).

Lorsque la présence d'un soluté influence l'écoulement par une variation de sa masse volumique, le terme exact n'est plus advection mais convection. Historiquement, on distinguait la convection forcée (l'advection) de la convection libre (un mouvement uniquement issu de l'hétérogénéité de la masse volumique). Par la suite, on appellera indistinctement advection tout transport du soluté par l'écoulement, quelle que soit l'origine de la vitesse du fluide.

1.4.2 Prise en compte de la variabilité spatiale de la masse volumique - Effets densitaires

La présence d'un soluté dissout influe localement sur la masse volumique. Tant que la concentration de celui-ci est faible, la variation spatiale de la masse volumique est négligée. Toutefois, lorsque la concentration du soluté augmente, l'hétérogénéité spatiale de la masse volumique induit des effets convectifs qui ne peuvent plus être négligés.

A l'échelle microscopique : représentation complète

A l'échelle microscopique, si on considère que l'ajout du soluté ne modifie pas significativement le volume du fluide, on peut considérer que la masse volumique est liée à la

concentration en soluté de la manière suivante :

$$\rho(x, y, z, t) = \rho_w + C(x, y, z, t) \quad (1.39)$$

Avec ρ la masse volumique du fluide dans lequel le soluté est dilué, ρ_w la masse volumique du fluide pur et C la concentration en soluté.

Pour résoudre l'écoulement, et afin de simplifier les calculs, on utilise l'approximation de Boussinesq : on considère le fluide incompressible (l'équation de conservation de la masse est inchangée), mais on prend en compte les variations de masse volumique dans l'équation de Navier-Stokes. Plus spécifiquement, on néglige ces variations dans les termes instationnaire et dans le terme inertiel. La concentration apparaît uniquement dans le terme de forces volumique. L'équation de Navier-Stokes devient :

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \frac{\rho}{\rho_w} \mathbf{g} - \frac{1}{\rho_w} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{u} \quad (1.40)$$

Afin de faire intervenir la concentration, on combine les équations 1.40 et 1.39 (on considère que la présence du soluté augmente la masse volumique et donc que les forces s'appliquent négativement dans la direction z) :

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\mathbf{g} \left(1 + \frac{C}{\rho_w} \right) - \frac{1}{\rho_w} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{u} \quad (1.41)$$

On s'affranchit du gradient vertical de la pression hydrostatique en définissant une charge hydraulique équivalente pour de l'eau pure : $h^* = p/\rho_w g + z$. Le terme de pression est ainsi remplacé dans l'équation (1.41) :

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -g \left(\frac{C}{\rho_w} + \nabla h^* \right) + \nu \nabla^2 \mathbf{u} \quad (1.42)$$

A l'échelle de Darcy

A l'échelle de Darcy, la plupart des études portent sur des problèmes d'intrusion d'eau salée dans les aquifères. L'approche la plus simple est celle du problème de Henry. On considère un aquifère délimité par des couches horizontales supérieures et inférieures imperméables. D'un côté, de l'eau douce entre dans l'aquifère (le flux est imposé), de l'autre de l'eau salée est présente, et la pression hydrostatique y est imposée. Le problème consiste à déterminer comment s'effectue l'équilibre du biseau salé. *Abarca et al.* (2007a) comparent des solutions analytiques et numériques pour résoudre le problème. Ils montrent que les solutions analytiques ont chacune leur limite et que les grandeurs caractéristiques historiquement définies ne sont pas suffisantes pour caractériser totalement le problème.

Shikaze et al. (1998) ont étudié l'impact de la présence de fractures verticales et horizontales sur le transport d'un soluté dans un aquifère. Ils montrent que des fractures verticales ouvertes de seulement 50µm recoupant un milieu poreux augmentent signifi-

tivement la distance à laquelle migre un soluté dense situé en surface. *Graf and Therrien* (2005) détaillent qu'avec seulement une fracture oblique d'ouverture identique, le soluté suit préférentiellement ce chemin sous l'effet de la différence de densité. Les échelles de temps sont grandes (de l'ordre de plusieurs années), cela signifie que l'état du système reste transitoire durant des temps souvent plus longs que les temps d'observation du système.

1.4. Transport monophasique - Effets de flottabilité

Chapitre 2

Méthodes de résolution numérique

Ce chapitre est consacré aux méthodes numériques permettant de résoudre les équations d'écoulement et de transport. Deux techniques ont été utilisées : (i) la résolution par la méthode des éléments finis, pour résoudre l'écoulement et simuler le transport avec effets densitaires, et (ii) une méthode lagrangienne de marche aléatoire, pour simuler le transport passif.

2.1 Resolution en éléments finis

La plupart des résolutions de problèmes physiques consistent à trouver un ou des champs (scalaires, vectoriels, ou tensoriels) $\mathbf{u}(M, t)$ satisfaisant à un ensemble d'équations aux dérivées partielles et d'équations ordinaires en tout point M d'un domaine Ω à tout instant t et respectant des conditions aux limites sur la frontière $\partial\Omega$ du domaine ainsi que des conditions initiales. Les conditions aux limites sont des relations ou des valeurs imposées à \mathbf{u} et/ou à ses dérivées sur la frontière. La méthode des éléments finis est une méthode destinée à mener à bien la résolution en utilisant la formulation variationnelle du problème.

Nous appliquons cette méthode pour calculer l'écoulement et simuler le transport à l'échelle hydrodynamique dans un chenal 2D d'ouverture constante ou variable. On cherche donc à résoudre l'équation de conservation de la masse, l'équation de Navier-Stokes et/ou l'ADE. En d'autres termes, on cherche à déterminer les champs de pression, vitesse et concentration dans une géométrie donnée. Les solutions numériques sont obtenues à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics.

2.1.1 Méthode des éléments finis

Comme toute autre méthode numérique, la méthode des éléments finis est fondée sur un découpage du domaine selon un maillage. Chaque sous-partie du domaine ainsi découpé est un élément. Chaque élément contient des nœuds qui sont des points dans l'espace sur lesquels on cherche la solution approchée. Dans chaque élément, on utilise une fonction de base pour représenter la solution approchée des équations. On choisit l'équation de la fonction de base, celle-ci est classiquement un polynôme d'ordre 1 à 3. Ensuite, pour chaque élément, le solveur cherche les valeurs aux nœuds ainsi que les constantes du polynôme qui permettent de respecter au mieux les équations différentielles définies.

Prenons l'exemple d'un problème 1D de transport par diffusion. L'équation de diffusion en 1D (selon x) est :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (2.1)$$

On considère une condition initiale dans tout le domaine : $C(x, t = 0) = 0$.

On impose une condition aux limites de type Dirichlet (concentration imposée) à l'entrée du système ainsi qu'une condition de type Neumann (flux imposé) à la sortie du système :

$$C(x = 0, t) = C_0 \quad \text{et} \quad D_m \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)_{x=L} = 0 \quad (2.2)$$

On discrétise spatialement le système (fig. 2.1) en N nœuds. On cherche à déterminer

$\hat{C}(x, t)$, la solution approchée de $C(x, t)$. Pour cela, on utilisera $C_i(x_i, t)$ la concentration à la position x_i (au niveau du nœud i) au temps t ainsi qu'une fonction de base $\psi_i(x)$ (équation (2.3)). Par exemple, si on utilise une fonction chapeau (en bleu dans la fig. 2.1) comme fonction de base, cela revient à approximer $C(x, t)$ via une fonction linéaire par morceaux (ligne rouge dans la fig. 2.1).

$$\hat{C}(x, t) = \sum_{i=1}^N C_i(x_i, t) \psi_i(x) \quad (2.3)$$

Etant donné que la solution recherchée est une solution approchée, l'équation (2.1) ne sera pas totalement respectée. On quantifie cet écart à la vraie solution en ajoutant le résidu ξ à l'équation :

$$\frac{\partial \hat{C}}{\partial t} - D_m \frac{\partial^2 \hat{C}}{\partial x^2} = \xi \quad (2.4)$$

On souhaite minimiser ce résidu. Selon la méthode des résidus pondérés et la méthode de Galerkin, le résidu sera minimum si le produit scalaire du terme de gauche de l'équation (2.4) et de la fonction de base est nul :

$$\int_0^L \left(\frac{\partial \hat{C}}{\partial t} - D_m \frac{\partial^2 \hat{C}}{\partial x^2} \right) \psi(x) dx = 0 \quad (2.5)$$

avec $\psi(x) = \sum_{i=1}^N \psi_i(x)$.

C'est la formulation variationnelle du problème. En développant l'équation (et en remplaçant $\partial C / \partial t$ par une différence finie), on obtient un système de N équations à N inconnues. Les inconnues sont les variables $C_1 \dots C_N$. Une fois le système écrit sous forme matricielle, le solveur peut calculer les inconnues. Le champ de concentration de la solution approchée est alors obtenu à partir de l'équation (2.3). On peut également calculer ξ et évaluer la qualité de l'approximation.

Lors de la résolution de problèmes transitoires, le résidu est calculé au niveau de chaque élément et pour chaque variable. Le critère d'acceptation de la solution pour chaque pas de temps est :

$$\left(\frac{1}{N} \sum_k \left(\frac{|\xi_k|}{A + R|U_k|} \right)^2 \right)^{1/2} < 1 \quad (2.6)$$

avec ξ_k et U_k le résidu et la solution calculés pour l'élément k , respectivement, A la tolérance absolue et R la tolérance relative. A et R sont des paramètres contrôlés par l'utilisateur. Cela permet de spécifier un seuil de précision minimum à respecter pour chaque variable.

Dans tous les modèles par éléments finis présentés dans la thèse, le solveur utilisé est UMFPACK. C'est un solveur direct qui est robuste, mais qui a besoin d'une quantité de

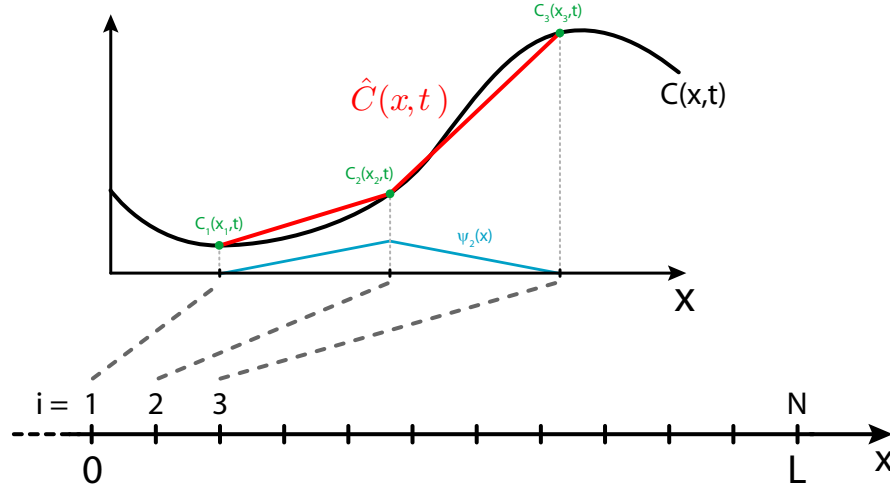


FIGURE 2.1 – Schéma d'un système 1D de longueur L discrétisé en $N - 1$ éléments de 2 nœuds chacun.

mémoire importante. Parmi les solveurs disponibles dans Comsol Multiphysics et tant que le problème n'est pas trop volumineux (trop de nœuds et trop de variables), c'est le solveur qui offre le meilleur compromis convergence/vitesse de calcul. Les plus gros modèles (la plupart de ceux utilisés pour l'étude détaillée dans le chapitre 3) peuvent avoir 140 000 éléments et près de 1 million de degrés de liberté. Sur une machine équipée de 8 cœurs CPU (cadencés à 3Ghz) et de 16Go de RAM, ils utilisent jusqu'à 14 Go d'espace mémoire et la résolution peut durer jusqu'à 16 heures.

2.1.2 Les conditions aux limites

Les conditions aux limites utilisées dans les modèles sont de diverses natures :

- Flux imposé, généralement appliqué sur la limite d'entrée du modèle,
- Pression imposée, généralement appliqué sur la limite de sortie du modèle,
- Concentration imposée en entrée du modèle. Cette condition peut varier au cours du temps,
- Flux advectif appliqué à la limite de sortie de modèle (i.e. aucun flux diffusif dans la direction normale à la section de sortie).

2.1.3 Le maillage

Pour toutes les simulations réalisées, on choisit des éléments de Lagrange triangulaires. Les éléments sont quadratiques pour le calcul de chacune des composantes de la vitesse ainsi que pour la concentration. Ils sont linéaires pour le calcul de la pression. Selon la variable concernée, la fonction de base est donc soit un polynôme de degré 2, soit un polynôme de degré 1.

En 2D, pour des éléments triangulaires de degré 2, chaque triangle est constitué de 6

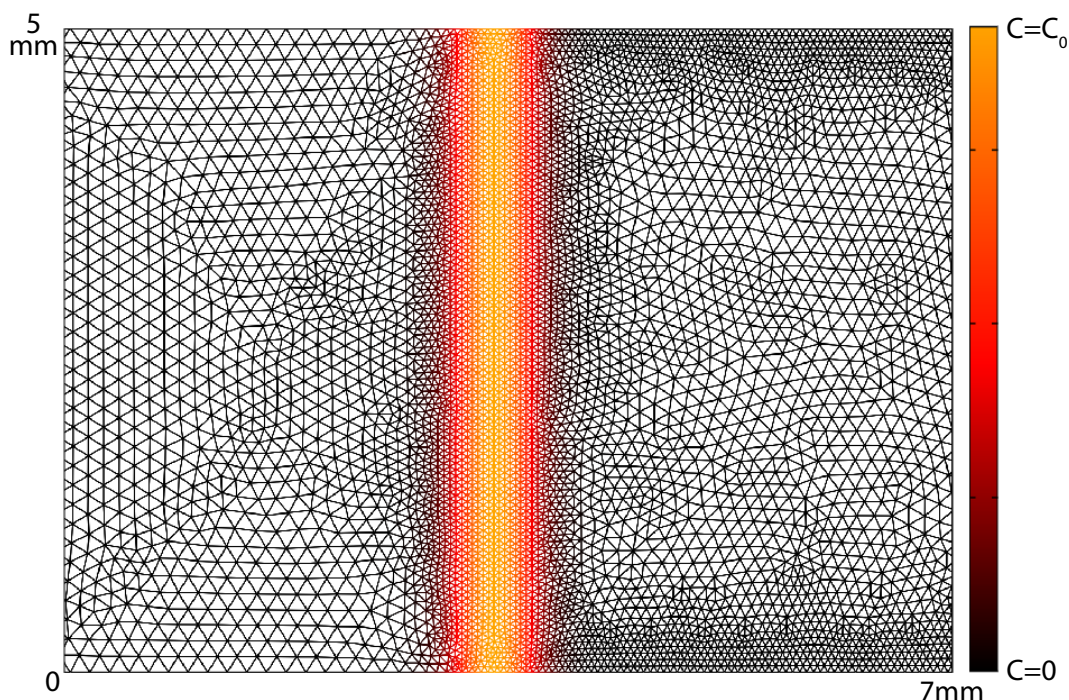


FIGURE 2.2 – Exemple de maillage 2D par des triangles. Les niveaux de couleurs représentent la concentration au temps initial. Les éléments sont les plus fins au niveau de l’injection afin d’obtenir une meilleure précision aux temps courts.

nœuds (3 aux sommets et 3 au milieu de chaque coté). Pour des éléments triangulaires de degré 1, chaque triangle est constitué de 3 nœuds (aux sommets).

La taille des éléments est déterminée en fonction du problème à résoudre. Les zones où plus de précision est souhaitée sont raffinées. Pour chaque problème, il faut trouver un maillage qui allie précision et vitesse de calcul. On considère que le maillage est suffisamment fin parce que le même problème traité avec 1,5 à 2 fois plus de nœuds aboutit à une solution identique pour chaque champ considéré (vitesse, pression, concentration).

Un exemple de maillage est montré en fig. 2.1. Le problème traité (le transport d’un soluté avec effets densitaires, détaillé au Chapitre 3) nécessite une plus grande précision lors des premiers temps de calculs car 1- le champ de vitesse est très variable dans l’espace 2- les biais ayant lieu aux temps courts se propagent aux temps ultérieurs. Le maillage est donc raffiné autour de la position initiale du soluté.

2.2 Simulation du transport passif par marche aléatoire

L’approche par marche aléatoire (ou random walk) est une méthode lagrangienne permettant de représenter le transport de soluté sous la forme du déplacement de particules porteuses d’une masse de soluté. Chaque particule peut être advectée et diffuser. Il est

2.2. Simulation du transport passif par marche aléatoire

ensuite possible de retrouver la concentration en un point x (sur une grille de mailles Δx et Δz) à partir des masses $M_i(x, z, t)$ des particules i qui s'y trouvent au temps t :

$$C(x, z, t) = \frac{\sum_{x_i \in [x - \frac{\Delta x}{2}; x + \frac{\Delta x}{2}]} \sum_{z_i \in [z - \frac{\Delta z}{2}; z + \frac{\Delta z}{2}]} M_i(x, z, t)}{\Delta x \Delta z} \quad (2.7)$$

∈

L'approche par marche aléatoire a été choisie pour deux raisons : (i) comme le domaine considéré dans ce cas est périodique, aucune taille longitudinale de domaine ne doit être fixée *a priori*. Le transport peut avoir lieu sur une distance très importante sans que le besoin en mémoire n'augmente sensiblement. De plus, le temps de calcul est directement proportionnel au nombre de pas de temps choisis. (ii) les méthodes lagrangiennes n'induisent pas de diffusion numérique autre que celle issue de la troncature subie par la valeur de position lorsqu'elle est stockée dans une variable à double précision.

2.2.1 Principe

Considérons une particule se déplaçant aléatoirement dans un espace à une dimension. Sa position à un temps t donné est $x(t)$. Soit $P(x, t)$ la probabilité que la particule soit à la position x durant le temps t . Au temps initial $t = 0$, la position de la particule est $x = 0$. L'équation de Fokker-Plank-Kolmogorov (FKPE) permet alors de relier les évolutions spatiale et temporelle de $P(x, t)$:

$$\frac{\partial P(x, t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x} [\mathbf{A}(x) P(x, t)] + \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} [\mathbf{B}(x) P(x, t)] \quad (2.8)$$

$\mathbf{A}(x)$ est assimilable à la vitesse moyenne du saut et $\mathbf{B}(x)$ à la dispersion statistique de la vitesse autour de la moyenne. On cherche à simuler le transport d'un soluté vérifiant l'équation d'avection-diffusion, reformulée en 1D de la façon suivante :

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x} [\mathbf{u}(x) C(x, t)] + \frac{\partial}{\partial x} \left[\mathbf{D}_m(x) \frac{\partial C(x, t)}{\partial x} \right] \quad (2.9)$$

Les équations (2.8) et (2.9) sont similaires si on identifie :

$$C(x, t) \equiv P(x, t); \quad \mathbf{u}(x) \equiv \mathbf{A}(x); \quad \mathbf{D}_m(x) \equiv \frac{1}{2} \mathbf{B}(x) \quad (2.10)$$

On note que pour arriver à l'équivalence, on a défini l'écoulement comme stationnaire (\mathbf{u} ne dépend pas du temps) et que le coefficient de diffusion moléculaire ne dépend ni du temps ni de l'espace. On peut montrer (*Risken* (1996), *Van Kampen* (1981)) que la FKPE est strictement équivalente à l'équation de Langevin :

$$\frac{dx(t|\mathbf{x}')}{dt} = \mathbf{u}[x(t|\mathbf{x}')] + \boldsymbol{\eta}(t) \quad (2.11)$$

avec $x(t|\mathbf{x}')$ la position au temps t d'une particule initialement positionnée en \mathbf{x}' . $\boldsymbol{\eta}$

est un bruit blanc gaussien à deux dimensions. L'équation (2.11) peut être résolue par une méthode Lagrangienne définie dans un système 2D par les équations 2.12 et 2.13. En temps discret, et si on représente le transport du soluté à l'aide de particules, la position de la $n^{\text{ième}}$ particule, située initialement à la position \mathbf{x}' , est obtenue ainsi :

$$x^{(n)}(t + \Delta t | \mathbf{x}') = x^{(n)}(t | \mathbf{x}') + u_x^{(n)}(t | \mathbf{x}')\Delta t + \eta_1 \sqrt{2D_m\Delta t} \quad (2.12)$$

$$z^{(n)}(t + \Delta t | \mathbf{x}') = z^{(n)}(t | \mathbf{x}') + u_z^{(n)}(t | \mathbf{x}')\Delta t + \eta_2 \sqrt{2D_m\Delta t} \quad (2.13)$$

avec $\mathbf{x}^{(n)} = (x^{(n)}, z^{(n)})$ la position de la particule et $\mathbf{u}^{(n)} = (u_x^{(n)}, u_z^{(n)})$ sa vitesse. Les η_i ($i = 1, \dots, d$) sont des nombres aléatoires indépendants issus d'un tirage dont la loi est gaussienne de moyenne nulle et de variance unitaire. Les équations 2.12 et 2.13 s'appliquent dans un milieu infini. Les simulations présentées dans cette thèse sont effectuées dans un domaine fini, il est donc indispensable d'ajouter une condition de rebond élastique aux niveau des parois imperméables.

Delay et al. (2005) ont effectué une synthèse des différentes implémentations de la marche aléatoire pour le transport en milieu poreux ou homogène. La méthode de random walk et son application y sont abordées en détail.

2.2.2 Algorithme de calcul et résolution

Chaque particule est traitée indépendamment des autres. Pour chaque pas de temps i et chaque particule n , l'algorithme de calcul est une boucle décomposée comme suit :

- 1 - La position $(x_i^{(n)}, z_i^{(n)})$ de la particule est connue,
- 2 - Les composantes de la vitesse de la particules sont déterminées à partir du champ de vitesse,
- 3 - A partir de la vitesse et du tirage aléatoire pour le saut diffusif, le transport à pas de temps fixe est effectué. Si la particule atteint la limite spatiale du système, elle subit un rebond élastique,
- 4 - La nouvelle position $(x_{i+1}^{(n)}, z_{i+1}^{(n)})$ de la particule est connue, on détermine les valeurs pour tous les observables utilisées (le champ de concentration et ses moments).

Les calculs sont effectués avec le logiciel Matlab. Afin de diminuer le temps de calcul, le code a été écrit en C et compilé pour être ensuite utilisable dans Matlab. Ainsi, la rapidité du code C compilé et la simplicité d'utilisation pour le post-traitement des données de Matlab sont combinés. Durant la simulation, la plupart du temps processeur est dédié à la génération des nombres aléatoires pour le saut diffusif.

2.2. Simulation du transport passif par marche aléatoire

Chapitre 3

Impact des effets densitaires sur le transport dans une fracture plane

La théorie décrivant les régimes pré-asymptotique et asymptotique du transport dans une fracture lisse est fondée, entre autres, sur l'hypothèse que les possibles hétérogénéités du champ de masse volumique induites par la distribution hétérogène d'un soluté sont négligeables. Dans ce chapitre, on s'attache à étudier qualitativement et quantitativement l'impact de ces effets densitaires sur le transport d'un soluté dans une fracture plane.

3.1 Écoulement dans une fracture lisse tridimensionnelle – Approximation 2D

Une fracture lisse est représentée dans un espace à 3 dimensions par 2 plaques parallèles (séparées par une distance $2b$) d'extension infinie. Dans ce système, on considère un écoulement dans la seule direction x . Pour un fluide donné soumis à un gradient de pression donné, la vitesse en un point sera uniquement dépendante de la distance entre ce point et les parois de la fracture (limites à non-glissement). Afin de minimiser la taille du système étudié tout en gardant l'analogie avec la fracture d'extension infinie, on peut estimer le champ de vitesse et déterminer les conditions pour lesquelles l'influence des bords latéraux est négligeable. Pour une fracture lisse parallélépipédique, où l'écoulement ne s'effectue que dans la direction x , *White* (1974) a obtenu une solution analytique de la vitesse :

$$u_x(y, z) = -\frac{4L_y^2}{\eta\pi^3} \left(\frac{dp}{dy} \right) \sum_{n=1,3,5,\dots}^{\infty} (-1)^{[(n-1)/2]} \cdot \left[1 - \frac{\cosh(n\pi z/L_y)}{\cosh(n\pi b/L_y)} \right] \frac{\cosh(n\pi y/L_y)}{n^3} \quad (3.1)$$

avec b la demi-ouverture et L_y la largeur de la fracture.

La figure 3.1 montre deux profils transverses de la vitesse $u_x(y, z)$ dans une fracture lisse de section rectangulaire. Le rapport entre l'ouverture et la largeur est fixé à 5. La solution analytique de White est comparée à une solution numérique (obtenue en résolvant l'équation de Navier-Stokes en éléments finis) et au profil de Poiseuille. Au milieu du domaine, l'ouverture contrôle totalement le profil de vitesse, il est identique au profil de Poiseuille (figure 3.1(b)). Sur le profil dans la direction y (figure 3.1(c)), deux couches limites permettent de respecter les limites de non-glissement. On remarque que dans l'intervalle $b < y < L_y - b$, le profil de vitesse selon y est uniforme. Au delà d'une distance depuis les bords égale à la demi-ouverture, le profil selon z est parabolique, identique au profil de Poiseuille et invariant dans la direction y .

En pratique l'ouverture d'une fracture sera quasiment toujours plusieurs ordres de grandeur inférieure à sa largeur. On peut donc raisonnablement utiliser l'hypothèse d'une invariance du champ de vitesse dans la direction y et étudier le système dans un plan (x, z) . Cette approximation 2D de la fracture 3D sous-tend également que tous les paramètres et observables doivent être invariants dans la direction y .

3.2 Transport en fracture 2D avec couplage densitaire

L'étude porte sur le transport d'un soluté dans une fracture avec prise en compte des effets densitaires. Pour ce faire, la concentration en soluté intervient dans le terme de forces volumiques extérieures de l'équation de Navier-Stokes (c'est l'approximation

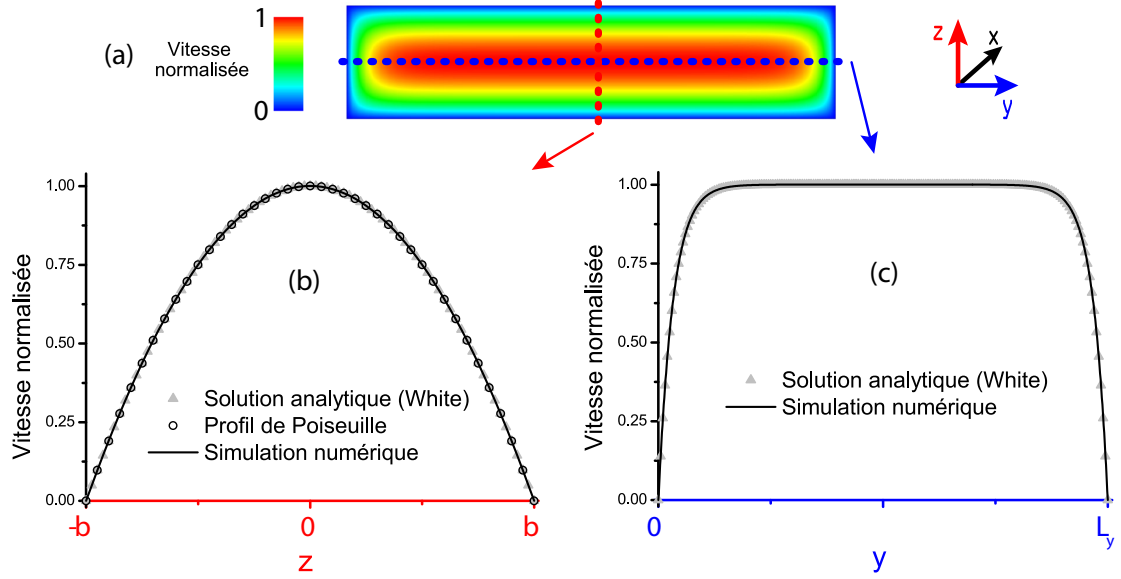


FIGURE 3.1 – (a) Section du champ de vitesse transverse   l’ coulement dans une fracture 3D de section rectangulaire d’ouverture $2b$ et de largeur L_y avec $L_y = 5 \times 2b$. (b) et (c) : profils vertical et horizontal (respectivement) de la carte de vitesse (a). L’ coulement s’effectue dans la direction x . La vitesse est normalis e par la vitesse maximale.

de Boussinesq, d taill e dans la section 1.4.2). Le transport et l’ coulement sont donc coupl s et doivent  tre r solus simultan ment. L’objectif est de caract riser l’impact des effets densitaires sur la vitesse et la dispersion d’un nuage de solut . Dans les paragraphes qui suivent, nous pr sentons succinctement les r sultats de l’ tude. L’analyse compl te est disponible dans l’article « Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts » en annexe de ce chapitre.

3.2.1 Mod le

Les  quations de l’ coulement (Navier-Stokes,  quation (1.41) et conservation de la masse,  quation (1.1)) et du transport (ADE,  quation (1.28)) sont r solues par la m thode des  l ments finis d crite en section 2. La g om trie choisie est une section 2D (dans le plan (x, z)) rectangulaire. La figure 3.2 d taill e les conditions aux limites et initiales du mod le.

$$\left. \begin{aligned} u_x &= \frac{3}{2} \bar{u}_x \left(1 - \frac{z^2}{b^2}\right) \\ u_y &= 0 \\ C &= 0 \end{aligned} \right\} \left[\text{Rectangular Domain} \right] \left\{ \begin{aligned} p &= 0 \\ \mathbf{n} \cdot (-D_m \nabla C) &= 0 \end{aligned} \right.$$

$$C(t = 0, x, z) = C_0 \exp\left(-\frac{(x-\bar{x})^2}{2\sigma_0^2}\right)$$

FIGURE 3.2 – Conditions aux limites et conditions initiales du mod le.

Écoulement

En entrée de modèle, un profil parabolique de vitesse est imposé le long de la frontière. En sortie, une valeur unique de pression est imposée sur toute la limite. Ces conditions aux limites sont valides tant que le soluté n’approche pas les frontières d’entrée et de sortie du modèle, ou que sa concentration est suffisamment faible pour n’y induire aucun écoulement vertical.

Transport

En entrée de modèle, la concentration est imposée à 0 le long de la limite. Cette condition est également valide uniquement si le soluté n’approche pas la limite. La géométrie du modèle est donc dimensionnée pour éviter une telle situation. En sortie, une condition de flux advectif est définie (i.e. il n’y a aucun flux diffusif selon la normale à la limite). Au temps initial, afin d’éviter toute discontinuité, la concentration en soluté est définie par une distribution gaussienne centrée sur la position \bar{x} et d’écart-type σ_0 :

$$C(t = 0, x, z) = C_0 \exp\left(-\frac{(x - \bar{x})^2}{2\sigma_0^2}\right) \quad (3.2)$$

L’écart-type σ_0 a initialement été choisi afin de reproduire les conditions d’injection des travaux expérimentaux présentés dans la thèse de Laure Michel (2009). Une valeur trop faible pose également des problèmes pour la résolution du problème car les gradients de concentration aux temps courts sont alors plus élevés, la taille des éléments doit donc être diminuée. Pour toutes les simulations, $\sigma_0 = 2,357 \cdot 10^{-4}$ m. La plupart du nuage est donc contenu sur une largeur inférieure à 1,5mm.

Maillage et résolution

Le maillage du système dépend des valeurs des paramètres, il contient de 40000 à 80000 nœuds. Le problème comporte donc jusqu’à 1,1 Million de degrés de liberté. Les tolérances du solveur sont choisies indépendamment pour chaque variable, de telle sorte que la précision soit plusieurs ordres de grandeur inférieure aux valeurs attendues.

Sur une machine équipée de 8 cœurs CPU et de 16Go de RAM, les calculs durent de 12h à 20h et utilisent jusqu’à 12Go de mémoire pour chaque modèle.

3.2.2 Loi d’échelle, nombres adimensionnels et plages de paramètres

En adimensionnant les variables de la façon suivante :

$$\tilde{x} = \frac{x}{2b} ; \quad \tilde{z} = \frac{z}{2b} \quad (3.3)$$

$$\tilde{t} = \frac{\bar{u}}{2b} t \quad (3.4)$$

$$\tilde{u} = \frac{u}{\bar{u}} \quad (3.5)$$

$$\tilde{C} = \frac{C}{C_0} \quad (3.6)$$

l'équation de Navier Stokes modifiée selon l'approximation de Boussinesq (équation (1.42) page 26) devient :

$$Re \left(\frac{\partial \tilde{\mathbf{u}}}{\partial \tilde{t}} + (\tilde{\mathbf{u}} \cdot \tilde{\nabla}) \tilde{\mathbf{u}} \right) = -Ar^* \tilde{C} - Re \tilde{\nabla} \tilde{h}^* + \tilde{\nabla}^2 \tilde{\mathbf{u}} \quad (3.7)$$

avec Ar^* , que nous appelons nombre d'Archimède advectif, défini comme le rapport entre les ordres de grandeur des forces densitaires et des forces visqueuses :

$$Ar^* = \frac{C_0 g (2b)^2}{\eta \bar{u}} \quad (3.8)$$

Ainsi, l'écoulement et le transport avec effets densitaires peuvent être caractérisés par 3 paramètres : le nombre Reynolds Re , le nombre de Péclet Pe , et Ar^* . Dans les simulations effectuées, Re varie de 0,5 à 5, Pe varie de 50 à 500 et Ar^* varie de 0,05 à 2000. Le régime d'écoulement est toujours laminaire. La géométrie dans la plupart des simulations est définie par une ouverture de 5 mm. Cette géométrie est héritée de travaux expérimentaux présentés dans la thèse de Laure Michel (2009).

Les valeurs des paramètres étudiés couvrent une gamme de situations pratiques comme par exemple l'écoulement dans une fracture d'ouverture 1 mm dans laquelle l'eau s'écoule à une vitesse moyenne de 10^{-3} m.s⁻¹. La concentration initiale du soluté (de coefficient de diffusion $5 \cdot 10^{-10}$ m².s⁻¹) s'échelonne alors de 10^{-2} à 50 g.L⁻¹. L'applicabilité des conditions étudiées est abordée plus en détail dans le chapitre 6.

3.2.3 Analyse qualitative

La figure 3.4 décrit l'évolution au cours du temps du champ de concentration en soluté lorsque les effets densitaires sont importants ($Ar^* = 1920$). L'ouverture de la fracture est de 5 mm et la longueur représentée dans la figure 10 mm puis 15 cm. L'exagération verticale de la carte de concentration est donc de x2 et x30, respectivement. Le temps est adimensionné par le temps caractéristique du régime asymptotique dans la théorie de la dispersion de Taylor-Aris (voir équation (1.35)). Ainsi, au-delà de $\tau = 1$, le coefficient de dispersion à $Ar^* = 0$ a atteint une valeur asymptotique correspondant au coefficient de dispersion de Taylor-Aris.

3.2. Transport en fracture 2D avec couplage densitaire

Au temps initial, la concentration du soluté suit une distribution gaussienne selon x et est uniforme dans la direction y .

Aux temps courts, l'écoulement local au voisinage du nuage de soluté est principalement contrôlé par les effets densitaires. Une partie importante de la masse de soluté tombe rapidement au fond de la fracture, induisant également de la convection de part et d'autre de la ligne d'injection (vérifiant la divergence des flux nulle). Ce premier phénomène provoque l'étalement (la dispersion) du soluté aux temps très courts. Localement, le profil vertical de vitesse n'est plus du tout parabolique.

Aux temps intermédiaires, la majorité du soluté est située dans la zone où la vitesse longitudinale est inférieure à la vitesse moyenne et où le cisaillement est le plus important. Ce phénomène contribue à ralentir le transport.

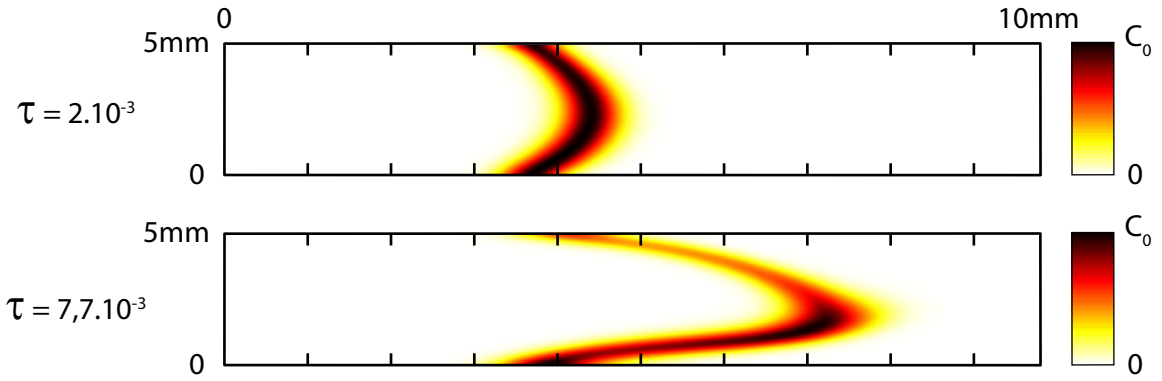


FIGURE 3.3 – Evolution du champ de concentration dans le temps avec effets densitaires. τ est défini par $\tau = t/t_c$ (voir équ. 1.35 page 22). $Re = 2, 5$, $Pe = 250$ et $Ar^* = 240$.

Il faut noter que la figure 3.4 correspond à un cas extrême où les effets densitaires sont très importants. La figure 3.3 montre des cartes de champ de concentration à deux temps τ pour $Ar^* = 240$. Le soluté chute beaucoup moins que lorsque $Ar^* = 1920$. Toutefois, sa présence perturbe tout de même le champ de vitesse longitudinal. Ce second effet provoque une augmentation du coefficient de dispersion. L'advection verticale induite par les effets densitaires contribue également à homogénéiser le nuage dans la direction transverse. Ce processus, qui se fait normalement uniquement par diffusion, provoque une diminution de la dispersion longitudinale. Ce troisième effet est surtout visible lorsque la vitesse moyenne d'écoulement augmente. Lorsque le nombre de Péclet est suffisamment grand, le troisième effet prend le dessus sur le second, le nuage sera moins étiré et la valeur du coefficient de dispersion deviendra inférieure au cas sans effet densitaire.

Enfin, aux temps plus longs, la diffusion homogénéise verticalement le champ de concentration. De plus en plus de soluté diffuse vers les lignes de courant où la vitesse est plus élevée. La dilution fait également que la concentration maximale devient trop faible pour que les effets densitaires aient encore un impact. À terme, la diffusion permettra d'obtenir des concentrations uniformes verticalement, de manière identique à ce

Chapitre 3. Impact des effets densitaires sur le transport dans une fracture plane

qu'on observe lors du transport sans effet densitaire (dispersion de Taylor-Aris, détaillée en section 1.3.4.2 à la page 22).

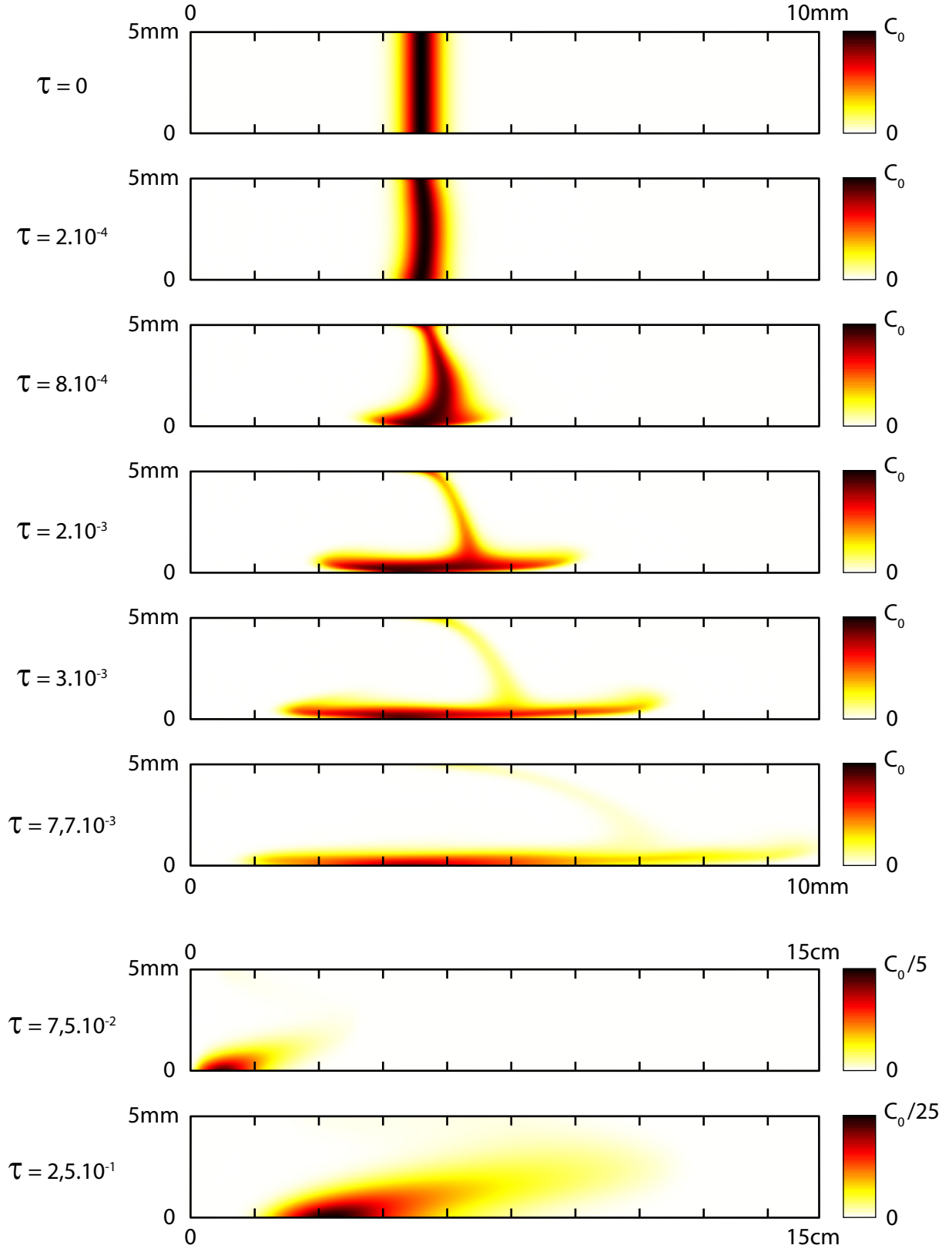


FIGURE 3.4 – Evolution du champ de concentration dans le temps avec effets densitaires. τ est défini par $\tau = t/t_c$ (voir équ. 1.35 page 22). $Re = 2, 5$, $Pe = 250$ et $Ar^* = 1920$.

3.2.4 Analyse quantitative

La figure 3.5 montre l'évolution temporelle du coefficient de dispersion apparente pour plusieurs valeurs de Ar^* et pour des valeurs de Péclet de 50 (figure 3.5A) et 250 (figure 3.5B). La solution analytique (détaillée dans l'équation (1.38)) correspond au transport sans effet gravitaire. Comme abordé précédemment, les effets densitaires induisent une valeur du coefficient de dispersion systématiquement plus importante aux temps courts. Toutefois, aux temps intermédiaires, celui-ci peut être inférieur (si Ar^* et Pe sont élevés) ou supérieur à la solution analytique (sans effet densitaire). Aux temps longs, le coefficient de dispersion atteint toujours la valeur asymptotique obtenue par Taylor et Aris, quelles que soient les conditions, et ce pour un temps qui dépend peu de la valeur de Ar^* .

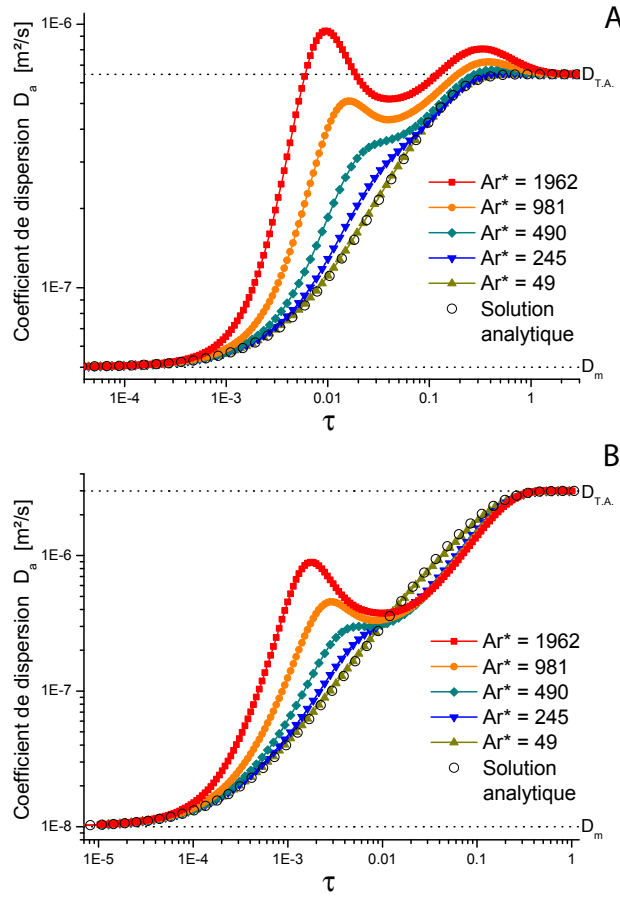


FIGURE 3.5 – Evolution temporelle du coefficient de dispersion apparente D_a . En A, $Re = 2, 5$ et $Pe = 50$ et en B, $Re = 2, 5$ et $Pe = 250$. D'après la figure 8 de l'article en annexe du chapitre.

On caractérise l'impact des effets densitaires par deux indicateurs :

- Le premier est un temps de retard du centre de masse du soluté. La figure 6(a) de l'article en annexe montre le retard du nuage. A cause de sa position prolongée dans

une zone d'écoulement plus lent, le centre de masse du nuage est à une distance X_G derrière la position $x = \bar{u}t$ (qui est la position d'une particule se déplaçant à la vitesse moyenne de l'écoulement). Cette distance atteint une valeur asymptotique lorsque $\tau > 1$. A partir de cette distance asymptotique, on calcule un temps caractéristique adimensionnel $\tau_r = -(X_G^{(\infty)}/\bar{u})/t_c$. Un temps τ_r plus élevé indique donc un retard plus important.

- Le second indicateur est lié à la valeur de la variance longitudinale après que le régime asymptotique est atteint. Dans ce régime, le coefficient de dispersion a atteint une valeur constante (identique avec ou sans effet densitaire), l'évolution temporelle de la variance est donc linéaire et il n'y a plus d'effet densitaire, de sorte que la pente est indépendante de Ar^* . La figure 7(a) de l'article en annexe illustre cette évolution. On obtient notre indicateur en prolongeant les asymptotes atteintes par la variance dans les cas avec et sans hétérogénéités de densité. Le temps caractéristique (τ_s) est alors la différence entre les deux temps mesurés à l'intersection entre ces droites et l'axe des temps. Ce temps intègre tous les effets des processus ayant modifié la dispersion avant le régime asymptotique. Selon les conditions, il peut être positif ou négatif. Pour un temps donné après le régime asymptotique, la variance est alors inférieure ou supérieure (respectivement) à celle obtenue après transport sans effet densitaire.

Comme attendu, τ_r augmente lorsque les effets densitaires sont plus forts. En effet, lorsque Ar^* augmente, la concentration initiale plus importante impose au nuage de rester plus longtemps dans une zone plus lente. Le temps nécessaire pour que la concentration devienne suffisamment faible (par diffusion principalement) pour ne plus influencer l'écoulement augmente également.

Le comportement de τ_s est plus complexe. Son évolution en fonction de Ar^* n'est pas monotone. Si les effets densitaires à concentration modérée provoquent une diminution de la variance, il en va tout autrement au-delà d'une valeur seuil de Ar^* . L'augmentation des effets densitaires provoque alors une augmentation de la variance asymptotique. Cette tendance est amplifiée par une diminution du nombre de Péclet.

3.2.5 Nombre de Péclet limite

On a vu que l'évolution de la variance est linéaire en régime asymptotique et que la pente ne dépend alors pas de Ar^* . Toutefois, l'évolution pré-asymptotique du coefficient de dispersion est contrôlée par les valeurs de Pe et Ar^* . La variance intègre ces différences. Ainsi, si on compare l'asymptote de la variance lors du transport avec effets densitaires à celle sans effet densitaire, elles sont parallèles entre elles et espacées de τ_s . Même pour des valeurs de Ar^* élevées (lorsque le transport est clairement influencé par les effets densitaires) il est possible de trouver une valeur du nombre de Péclet pour laquelle le

transport conduit asymptotiquement à $\tau_s = 0$, c'est à dire à une variance du nuage exactement égale à celle obtenue par transport sans effet gravitaire. Dans leurs travaux, *Erdogan and Chatwin* (1967) font référence à ce Péclet limite et l'ont étudié en fonction du ratio entre la viscosité cinématique et le coefficient de diffusion moléculaire (i.e. le nombre de Schmidt). L'obtention de cette valeur limite du nombre Péclet est illustrée dans la figure 9 de l'article en annexe. La figure 3.6 ci-dessous montre la valeur du Péclet limite pour 3 valeurs de Ar^* . Ces valeurs ont été obtenues en cherchant par dichotomie la valeur de Pe vérifiant la condition de variance identique au cas sans effet densitaire. Pour chaque point de Ar^* , le résultat a en moyenne été obtenu après 6 tests, soit environ 4 jours. Le temps de calcul nécessaire étant une barrière importante, l'étude n'a pas été poursuivie.

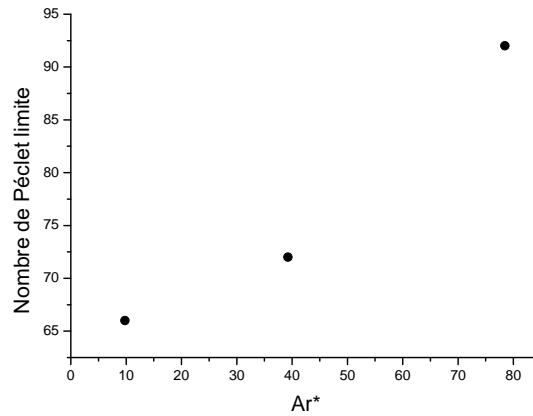


FIGURE 3.6 – Valeur du nombre de Péclet limite obtenue pour 3 valeurs de Ar^* , avec $Re = 0, 5$.

3.3 Discussion et conclusions

Nous avons étudié l'impact des effets densitaires sur le transport d'un soluté dans une fracture lisse. Les conditions d'écoulement et de transport du problème peuvent être décrites par trois nombres sans dimension : le nombre de Reynolds Re , le nombre de Pe et le nombre d'Archimède advectif Ar^* . Ce dernier est défini comme le rapport entre les ordres de grandeur des forces densitaires et des forces visqueuses. Il permet de quantifier l'intensité des effets densitaires.

L'étude est effectuée dans un domaine bidimensionnel (dans les directions x et z). L'hypothèse est donc qu'il y a une invariance dans la direction y . Dans la pratique, si l'injection est ponctuelle dans l'espace (et non en tout y), les effets densitaires induiront également un transport advectif dans la direction y . Cela peut conduire, aux temps courts, à un étalement du nuage au contact de la paroi inférieure sur une plus grande surface ainsi

qu'à une diminution de la valeur du coefficient de dispersion longitudinale (lors du premier pic). La vitesse de chute du nuage sera aussi probablement plus élevée. Tout ceci peut induire une modification de second ordre de l'amplitude des phénomènes, mais ceux-ci restent qualitativement les mêmes.

Les effets densitaires induisent trois effets : (i) Aux temps courts, le soluté chute le long de la paroi de la fracture provoquant indirectement de la convection de part et d'autre de la ligne d'injection. La vitesse dans cette zone est également inférieure à la vitesse moyenne et le cisaillement est important. Ce processus provoque un retard du centre de masse du nuage et une dispersion plus importante. (ii) La présence du soluté induit une modification des vitesses longitudinales. Le profil n'est plus parabolique et la dispersion longitudinale augmente. (iii) La convection provoquée par les effets densitaires disperse le soluté dans la direction transverse. Ce phénomène contribue à diminuer la valeur du coefficient de dispersion longitudinal et est d'autant plus important que le cisaillement est fort ($Pe \nearrow$). Le premier effet n'intervient qu'aux temps très courts. Les deux autres sont en compétition. Pour un Ar^* , seul le troisième effet est contrôlé par le nombre de Péclet. La valeur de Pe détermine donc quel effet prend le dessus, ce qui justifie l'existence d'un Péclet limite pour lequel ils se compensent et la variance en régime asymptotique est la même que celle du cas sans effet densitaire.

Enfin, aux temps longs, le coefficient de dispersion atteint une valeur asymptotique identique à celle donnée par Taylor et Aris.

L'impact des effets densitaires est quantifié grâce à deux temps adimensionnels : (i) le premier (τ_r) caractérise le retard du centre de masse, (ii) le second (τ_s) intègre tous les effets transitoires ayant altéré l'évolution de la dispersion. Il est mesuré comme un retard (ou une avance), par rapport au cas sans effet densitaire, pour atteindre une valeur donnée de variance du champ de concentration.

Le retard du centre de masse (τ_r) augmente avec Ar^* tandis que la dépendance de τ_s vis-à-vis de Pe et Ar^* est plus complexe. En effet, une augmentation de Ar^* n'induit pas systématiquement une augmentation de τ_s . Il est même possible de trouver, pour chaque valeur de Ar^* , une valeur limite du nombre de Péclet pour laquelle l'évolution asymptotique de la variance est identique à celle obtenue pour le cas négligeant les effets densitaires, et ce même lorsque ceux-ci ont perturbé le transport pré-asymptotique de manière significative.

**Annexe : « Horizontal pre-asymptotic solute transport
in a plane fracture with significant density contrasts »**



Contents lists available at ScienceDirect

Journal of Contaminant Hydrology

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jconhyd

Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts

J. Bouquain, Y. Meheust*, P. Davy

Geosciences Rennes (UMR CNRS 6118), Université Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes Cedex, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 23 December 2009

Received in revised form 27 July 2010

Accepted 4 August 2010

Available online 12 August 2010

Keywords:

Fracture

Flow

Transport

Dispersion

Density currents

Finite elements

ABSTRACT

We investigate the dispersion of a finite amount of solute after it has been injected into the laminar flow occurring in a horizontal smooth fracture of constant aperture. When solute buoyancy is negligible, the dispersion process eventually leads to the well-known asymptotic Taylor–Aris dispersion regime, in which the solute progresses along the fracture at the average fluid velocity, according to a one-dimensional longitudinal advection–dispersion process. This paper addresses more realistic configurations for which the solute-induced density contrasts within the fluid play an important role on solute transport, in particular at small and moderate times. Flow and transport are coupled, since the solute distribution impacts the variations in time of the advecting velocity field. Transport is simulated using (i) a mathematical description based on the Boussinesq approximation and (ii) a numerical scheme based on a finite element analysis. This enables complete characterization of the process, in particular at moderate times for which existing analytical models are not valid. At very short times as well as very long times, the overall downward advective solute mass flow is observed to scale as the square of the injected concentration. The asymptotic Taylor–Aris effective dispersion coefficient is reached eventually, but vertical density currents, which are significant at short and moderate times, are responsible for a systematic retardation of the asymptotic mean solute position with respect to the frame moving at the mean fluid velocity, as well as for a time shift in the establishment of the asymptotic dispersion regime. These delays are characterized as functions of the Péclet number and another non-dimensional number which we call *advective Archimedes number*, and which quantifies the ratio of buoyancy to viscous forces. Depending on the Péclet number, the asymptotic dispersion is measured to be either larger or smaller than what it would be in the absence of buoyancy effects. Breakthrough curves measured at distances larger than the typical distance needed to reach the asymptotic dispersion regime are impacted accordingly. These findings suggest that, under certain conditions, density/buoyancy effects may have to be taken into consideration when interpreting field measurement of solute transport in fractured media. They also allow an estimate of the conditions under which density effects related to fracture wall roughness are likely to be significant.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The transport of contaminants in fractured geological media occurs mainly through networks of interconnected fractures. Modelling transport at the network scale requires understanding of the transport process at the network

building block, the single fracture. This paper is concerned with the dispersion of a finite volume of solute in a horizontal plane smooth fracture under the combined action of advection by the sheared flow, molecular diffusion, and density current. It is well known that when studying large scale hydrogeological problems such as that of seawater intrusion into a coastal aquifer (Abarca et al., 2005, 2007) or brine transport in the subsurface (see for example (Flowers and Hunt, 2007)), heterogeneities in the fluid densities

* Corresponding author.

E-mail address: yves.meheust@univ-rennes1.fr (Y. Meheust).

strongly influence the solute-advecting flow, so that flow and transport are in effect coupled. This effect is usually neglected when studying the transport of contaminants in fractured media, as it is not seen at the field scale (Becker, 2003). A recent study by Trenchine and Gouze (2005), however, has shown that weak density contrasts combine with the natural wall roughness of a horizontal fracture to create preferential transport paths and, consequently, that such weak density contrasts potentially result in anomalous transport at the fracture scale. In this paper, we show that even if one does not take fracture wall roughness into consideration, weak density contrasts do impact the dispersion of a solute inside a horizontal fracture.

The fate of a solute advected by a sheared flow was first studied by Taylor (1953). This seminal paper addressed the dispersion of a passive solute of molecular diffusivity D_m by the permanent flow through a cylindrical tube of radius a ; the author showed that the spatial distribution of the solute evolves under the combined and competing effects of passive longitudinal convection and transverse molecular diffusion. At initial times, fracture wall-induced shear creates a dramatic longitudinal spreading of the solute cloud by the parabolic radial velocity profile; cross-sectional molecular diffusion, by allowing fluid particles carrying different solute concentrations to jump between flow lines in which they travel at different velocities, promotes transverse mixing and counteracts longitudinal advective spreading. At times much larger than a characteristic time $t_c = a^2/D_m$, transverse diffusion has become predominant, which eventually leads to complete cross-sectional homogenization of the solute distribution; in a frame moving at the cross-sectional mean fluid velocity (or specific discharge) \bar{u} , the asymptotic evolution of the solute concentration field is governed by a one-dimensional longitudinal advection–dispersion process with a dispersion coefficient $(1/48)a^2\bar{u}^2/D_m$. As pointed out by the author, this well-known result corresponds to a peculiar process, since fluid particles see their solute content first increase and then decrease in time as they pass through the solute cloud (if they are travelling close to the tube axis) or as the solute cloud catches up on them (if they are travelling close to the solid wall). By studying the behavior of the horizontal moments of the solute concentration, Aris (1956) provided a more general theoretical framework to the predictions and experimental observations of Taylor (1953, 1954a). He showed that, for a cylindrical tube of arbitrary cross-section, (i) the concentration becomes uniform across the tube at long times, (ii) the center of mass of the solute cloud ultimately travels at the mean fluid velocity, and (iii) its longitudinal dispersion is governed by a one-dimensional diffusion equation. Taking into account the longitudinal molecular diffusivity, which Taylor (1953) had neglected, Aris (1956) obtained an asymptotic dispersion coefficient in the form of

$$D_{T.A.} = D_m + \beta \frac{a^2 \bar{u}^2}{D_m} \quad (1)$$

where β is a shape factor dependent on the cross-sectional distribution of the (axial) flow velocities, and consequently, on the geometry of the tube cross-section. In the case of a circular tube, the shape factor $\beta = 1/48$ is recovered. The

author also showed that if the volume of fluid injected is finite, all moments of the concentration distribution go asymptotically to those of a Gaussian law (in particular, all moments of odd order go to 0): that is, the solute distribution tends to a Gaussian law.

A number of later studies have complemented the theoretical findings of G. I. Taylor and R. Aris for the circular tube geometry. Gill and Sankarasubramanian (1970) found that the dispersion of the mean cross-sectional concentration with respect to the frame that travels at velocity \bar{u} is described by a generalized diffusion equation in which spatial derivatives of all orders are included, but with pre-factors that decay rapidly with the order of the derivative. The transient mean cross-sectional concentration \bar{C} can then be computed at any time using a series expansion in its spatial derivatives, where only the pre-factors are time-dependent. By truncating both the diffusion equation and the expansion for \bar{C} to the second order derivative, the description remains valid for times larger than $t \approx 0.005 \cdot t_c$, and the transient one-dimensional \bar{C} concentration profile along the tube are computed analytically. Chatwin (1970) also studied the approach to the asymptotic state analytically when the injected solute volume is finite, focusing on the influence of the initial solute distribution and on the asymptotic convergence of the three first moments of \bar{C} , while Barton (1983), Stokes and Barton (1990) provided a more complete approximation of the approach to normality. P. C. Chatwin has also addressed the initial development of longitudinal dispersion, both from a description based on continuous diffusion equations (Chatwin, 1976) to study the initial variations in \bar{C} , and using a Lagrangian formalism to investigate how initial longitudinal dispersion depends on radial position (Chatwin, 1977).

The smooth fracture geometry, for which the “tube” is constituted by the space between two infinite plane, parallel to each other and separated by a distance $2a$, corresponds to a particular case of the general theory that yields Eq. (1). The value for the shape factor in this case was first given by Wooding (1960):

$$\beta_{\text{frac}} = \frac{2}{105}. \quad (2)$$

The time evolution of the cross-sectional mean concentration has been derived by Berkowitz and Zhou (1996), based on the method developed for the circular geometry by Gill and Sankarasubramanian (1970), and for a continuously-injected solute. The resulting apparent longitudinal dispersion evolves in time according to

$$D(t) = D_m + \frac{\bar{u}^2 a^2}{D_m} \left[\beta_{\text{frac}} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{18}{(n\pi)^6} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D_m}{a^2} t\right) \right] \quad (3)$$

where the first corrective term is sufficient already at $t/t_c \approx 0.1$. More recently, a full numerical description based on a Lagrangian formalism was used by Dentz and Carrera (2007) to study a problem identical to that of Taylor and Aris, but applied to stratified aquifers. The Lagrangian approach enables to separate mixing from spreading in the analysis by monitoring the fate of point sources of solute within the initial solute cloud. Incidentally, their formalism also allows

the authors to recover relation (3), this time for a finite injected volume of solute.

The effect on solute transport in a horizontal axisymmetrical tube of density contrasts within the fluid, due to heterogeneities in the solute distribution, was first mentioned by Taylor (1954b) as producing density currents and counter-currents, and being negligible under the experimental conditions that he had addressed to verify his theoretical predictions. However, other authors Reejhsinghani et al. (1962) measured significant deviations from the Taylor–Aris predictions, and in particular that the measured dispersion was dependent on the Péclet number. Erdogan and Chatwin (1967) provided an explanation to that observation: density heterogeneities within the fluid have two effects on transport. On the one hand, axial density gradients cause axial pressure gradients, and therefore changes in the axial velocity distribution; this effect is likely to increase longitudinal dispersion. It is velocity independent, so that at smaller Péclet numbers Pe the longitudinal dispersion is expected to be larger compared with the same configuration without buoyancy effects. On the other hand, density heterogeneities cause vertical flows that make advection contribute to cross-sectional mixing, which is expected to decrease the overall longitudinal dispersion. This effect is all the more important as the specific discharge is larger, and therefore at large enough Péclet numbers, the longitudinal dispersion is expected to be smaller than what it would be in the absence of buoyancy effects.

Erdogan and Chatwin (1967)'s semi-quantitative analysis showed that, under moderate density effects, the diffusion equation for \bar{C} must be corrected by a term involving the spatial derivative of \bar{C} to the power 3. In other words, the equation can be written in the form of a standard diffusion equation in which the dispersion coefficient is a quadratic function of the local solute concentration gradient $\partial \bar{C} / \partial x$ (Smith, 1978). For Schmidt numbers $Sc = \nu / D_m$, where ν is the kinematic viscosity of the fluid, much larger than 1 (as is the case for usual liquids), the pre-factor to that additional concentration-dependent term is the sum of four terms, the two dominant of which scale respectively as Pe^2 and Pe^{-2} , thus accounting for the two competitive effects described above. The asymptotic Taylor–Aris state is recovered at times that the authors predict to potentially be much larger than the characteristic time t_c defined by Taylor (1953). The analysis is based on developments of the stream function into series of a non-dimensional number

$$G = -\frac{\Delta\rho g a^4}{\rho_0 \nu^2} \frac{\partial \bar{C}}{\partial x} \quad (4)$$

where $\Delta\rho$ is the density perturbation with respect to the density ρ_0 of the carrier fluid, and g is the acceleration due to gravity. Due to the requirement that G be very small, the analysis by Erdogan and Chatwin (1967) is only valid for the approach of the asymptotic state. It was later shown that it is also only suited to flows of fluid with Sc much larger than 1 (Barton, 1976a), and that the change in the solute dispersion induced by buoyancy effects happened mostly at short and intermediate times, where Erdogan and Chatwin (1967) is not valid (Barton, 1976a). The later analytical study by Smith

(1978) concludes that the evolution of the longitudinal spatial variance of the solute cloud is of the form

$$\sigma_x^2(t \rightarrow \infty) = 2D_{T.A.}(t - t_d) \quad (5)$$

where the delay time t_d is the signature of the intermediate regime where molecular dispersion, advection and buoyancy all interplay. This is also true in the absence of buoyancy effects, but with a shorter delay time, all other parameters being equal.

Note that both Erdogan and Chatwin (1967) and Smith (1978) address an axisymmetric geometry, under conditions of weak buoyancy effects. In the non-buoyant case, Aris (1956) has shown that the plane fracture and axisymmetrical geometries are two particular cases in a more general configuration to which the same theory applies. When the impact of density heterogeneities on flow is considered, the qualitative interpretation of Erdogan and Chatwin (1967) of the two resulting effects on transport remains unchanged. Therefore, though differences are expected in-between the tube- and parallel plate- configurations when density effects are taken into account, we expect the predictions of Erdogan and Chatwin (1967) for the axisymmetric configuration to be mostly valid for the parallel plate configuration, in particular with respect to the influence of the Péclet number.

In accordance with Barton (1976b)'s statement that “the dispersion of a buoyant solute cannot be predicted without the full numerical solution of the governing equations”, we have performed a two-dimensional finite element analysis of the buoyancy-coupled flow of water ($Sc = 10^3$) and solute transport in a two-dimensional plane fracture. We have focused in particular on describing the mechanism of how density/buoyancy effects impact flow and transport at short and intermediate times, and what the consequences are on the dispersion of the solute at asymptotic times, in particular in terms of delay/retardation time and under conditions relevant to contaminant hydrology. We also test the prediction of Erdogan and Chatwin (1967) relative to the influence of the Péclet number, and the range of times for which their analysis applies. The mathematical basis and numerical implementation of our simulations are presented in Section 2, the results in Section 3; the results are discussed with respect to their consequences in hydrology and in relation to Erdogan and Chatwin (1967)'s paper in Section 4.

2. Basic equations and numerical method

2.1. Mathematical background

2.1.1. Fracture flow and solute transport

The fracture is defined as the space in-between two infinite plane walls, parallel to each other and separated by the fracture aperture $2a$. We simulate the flow, through the fracture, of an incompressible liquid of mass density ρ_w , and the transport by this liquid of a finite volume of solute, along a direction corresponding to the space coordinate x . We denote z the space coordinate defined along the direction perpendicular to the fracture walls, and assume that both flow and transport are independent of the remaining space coordinate, y . There is no energy source in the system, and we assume a constant temperature. We further assume that the fluid

velocity has no component along the y direction, so that the description is fully two-dimensional. Heterogeneities in the distribution of the solute along the y direction can lead to perturbations in the flow along that direction as well (see e.g. Smith (1990) for the open channel configuration), but it is not what we want to focus on in this study. Consequently, the flow and transport processes are fully described by the mass density field $\rho(x, z, t)$, the pressure field $p(x, z)$, the velocity field $\mathbf{u}(x, z, t)$, and the concentration field $C(x, z, t)$.

The Navier–Stokes equations express the conservation of the fluid mass and momentum, that is, respectively:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (6)$$

and

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = \rho \mathbf{g} - \nabla p + \eta \nabla^2 \mathbf{u} \quad (7)$$

where \mathbf{g} is the gravity field and η is the dynamic viscosity of the fluid. The associated boundary conditions are: (i) no flow at the fracture walls, that is, $\mathbf{u} = 0$ for $z = \pm a$, and (ii) a constant mean velocity \bar{u} imposed through the fracture inlet cross-section.

The solute molecular diffusivity, D_m , or molecular diffusion coefficient, is assumed to be independent of its local concentration, thus solute transport is described by a standard advection–dispersion equation (ADE):

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -(\mathbf{u} \cdot \nabla) C + D_m \nabla^2 C. \quad (8)$$

We consider a situation for which a finite mass of solute is initially present in the fracture and distributed according to an initial concentration field $C^{(i)}(x, z)$. The concentration field is left to evolve under the combined effect of advection and molecular diffusion, and monitored.

Until now the description is not complete, as a constraint on the mass density of the fluid, which consists of the carrier liquid and the solute dispersed in it, is missing.

2.1.2. Density coupling of flow and transport

If the fluid mass density is assumed equal to that (considered constant) of the carrier liquid (water), ρ_w , everywhere and at any time, then Eq. (6) results in a divergence-free velocity field, and the Navier–Stokes and ADE equations are decoupled. The stationary flow solution to the Navier–Stokes equations is the classic parallel flow ($u_z = 0$) with a Hagen–Poiseuille parabolic profile:

$$u_x^{(hp)} = \frac{3}{2} \bar{u} \left(1 - \frac{z^2}{a^2} \right). \quad (9)$$

The problematics are then those of a passive advection–dispersion by a parabolic velocity profile, which has been addressed by a number of authors since the seminal paper by Taylor (1953), as presented at length in the Introduction (Section 1) of the present paper.

In the more general case, which is the one we address, the fluid consisting of the carrier liquid and the dispersed solute is

not incompressible, due to the dependence of its mass density on the local solute concentration:

$$\rho(x, z, t) = \rho_w + \alpha C(x, z, t) \quad (10)$$

where α is a coefficient close to 1 (Taylor, 1954b). This relation in effect couples Eq. (7) to Eq. (8): an uneven distribution of concentration results in a modification of the solute-advecting velocity field. Two important consequences are that: (i) the flow is never stationary, as it is influenced by the non-stationary solute concentration; (ii) the mass density field can vary along a given flow line, which means that the flow cannot be perfectly incompressible.

We denote C_0 the solute concentration in the injected solute, and ρ_0 the corresponding fluid mass density, which is also the largest fluid density to be measured anywhere at any time in the fracture. Using these two quantities, we can rewrite the relative density contrast between the fluid and pure water as C/C_0 (Abarca et al., 2005), that is,

$$\rho(x, z, t) = \rho_w \left(1 + \epsilon \frac{C(x, z, t)}{C_0} \right) \quad (11)$$

where $\epsilon = (\rho_0 - \rho_w)/\rho_w = (\Delta\rho)_0/\rho_w$ is the relative density contrast between the injected fluid and the carrier liquid.

We further make use of the classic Boussinesq approximation:

Firstly, the flow is assumed to be incompressible, that is, we assume that the variations induced in $\nabla \cdot \mathbf{u}$ by the non-constant term in Eq. (10) can be neglected. This is justified as the largest perturbation to the constant ρ_w mass density is the maximum of the initial concentration distribution, $C^{(i)}(x, z)$, and always amounts to less than a percent. Eq. (6) is therefore replaced by

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (12)$$

Secondly, fluctuations in the inertial mass density are neglected, while those in the gravitational mass density are accounted for. That is, we consider a constant mass density ρ_w in the acceleration term of Eq. (7), and the complete mass density from Eq. (10) in the gravitational force. After pressures have been corrected for the vertical hydrostatic gradient due to the carrier liquid density, by introducing the equivalent freshwater head, $h^* = p/\rho_w g + z$, Eq. (7) is transformed into

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -g \left(\epsilon \frac{C}{C_0} \hat{\mathbf{z}} + \nabla h^* \right) + \nu \nabla^2 \mathbf{u} \quad (13)$$

where $\nu = \eta/\rho_w$ is the carrier liquid's kinematic viscosity. The feedback exerted by the solute onto the flow is contained in the reduced gravity term, $\epsilon g(C/C_0)$. One can without any lack of generality choose $\alpha = 1$ in Eq. (10), or, equivalently, $\epsilon = C_0/\rho_w$ in Eq. (11); it is equivalent to changing the reference concentration C_0 . The case $\alpha = 1$ corresponds to a situation for which the addition of solute molecules to a fluid particle would not significantly modify its volume, and leads to the final flow equation:

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -g \left(\frac{C}{\rho_w} \hat{\mathbf{z}} + \nabla h^* \right) + \nu \nabla^2 \mathbf{u}. \quad (14)$$

Note that cases in which the solute is lighter than the carrier fluid are described by negative values of ϵ . Two flow and transport processes corresponding to two opposite values of ϵ are simply deduced from one another by inverting the vertical frame vector \hat{z} .

2.1.3. Quantification of the flow and transport conditions—Dimensionless equations

The Reynolds number $Re = 2a\bar{u} / \nu$ quantifies the relative magnitudes of the non-linear term to the viscous term in Eq. (7). Most simulations presented in this paper have been performed by reference to an existing experimental configuration (Michel, 2009), with $2a = 5$ mm and \bar{u} between 0.1 and 1.0 mm/s. The carrier liquid is always water. Thus, Re lies in the range $[0.5; 5.0]$, which ensures that the flow is fully laminar.

The ratio of the local rate of advection to that of diffusion is quantified through the Péclet number $Pe = 2a\bar{u} / D_m$. It will be all the more difficult for molecular diffusion to homogenize concentrations vertically as the Péclet number will be larger. The range of Péclet numbers considered in our study is $[50; 500]$.

In order to quantify the importance of buoyant forces relative to advection, we compute the ratio of the typical order of magnitude of the buoyant force to that of the viscous force in Eq. (14). The resulting dimensionless number, which we denote *advective Archimedes number*, is written as

$$\mathcal{Ar}^* = \frac{C_0 g (2a)^2}{\eta \bar{u}} = \frac{(\Delta\rho)_0 g (2a)^2}{\rho_w \nu \bar{u}} \quad (15)$$

where the parameter C_0 is our reference concentration as defined in Section 2.1.2, and is also the initial density contrast between the injected fluid and water, $(\Delta\rho)_0$. The values of \mathcal{Ar}^* investigated range between 0.05 and 2000, that is, we consider situations for which gravity currents are always a perturbation to the parabolic Poiseuille velocity profile. This is however not true at very short times, for which we shall see that a behavior closer to gravity flow is observed, that is that the macroscopic flow is more strongly influenced by density contrasts.

Note that \mathcal{Ar}^* is different from the Archimedes number \mathcal{Ar} classically defined when studying gravity flows, as the typical flow velocity is here a constraint external to the system; it is not controlled by density effects. On the contrary, \mathcal{Ar}^* is closely related to characteristic numbers already defined for various problems in fluid mechanics. In particular, it can be rewritten as

$$\mathcal{Ar}^* = Re \cdot Ri = \frac{Re}{\mathcal{Fr}^2} \quad (16)$$

where \mathcal{Fr} is the densimetric Froude number, and Ri the densimetric Richardson number, classically used in studies of oceanic flows. In addition, the physical meaning of \mathcal{Ar}^* is also analogous to that of the Argand number (also denoted \mathcal{Ar}) introduced by England and McKenzie (1982) in the study of continental deformations, despite the fact that the two numbers are being used to tackle deformations of media with very different rheologies, and pertaining radically different geological frameworks. In addition, if one replaces the fracture aperture by its expression in terms of the fracture permeability, $2a = (12K)^{1/3}$, we see that our advective Archi-

medes number is equal to $6/a_u$, where a_u is Henry's gravity number (Abarca et al., 2005), or, equivalently, equal to the gravity number defined by d'Angelo et al. (2008) in their study of buoyancy-driven flows in a two-dimensional porous medium. However we should not forget that the flow in our system is described by a Navier–Stokes law, in contrast to these two latter problems for which it is described by the Darcy law.

The above-defined dimensionless numbers arise naturally from the classic adimensionalization of the Navier–Stokes and transport equations. Defining the dimensionless space coordinates $\tilde{x} = x / (2a)$ and $\tilde{z} = z / (2a)$, the dimensionless time $\tilde{t} = (\bar{u} / (2a))t$, and the corresponding gradient $\tilde{\nabla}$ and time-derivative $\partial / \partial \tilde{t}$, and further defining the following dimensionless quantities: $\tilde{u} = u / \bar{u}$, $\tilde{h}^* = h^* (g / \bar{u}^2)$ and $\tilde{C} = C / C_0$, Eq. (14) becomes

$$Re \left(\frac{\partial \tilde{u}}{\partial \tilde{t}} + (\tilde{u} \cdot \tilde{\nabla}) \tilde{u} \right) = -\mathcal{Ar}^* \tilde{C} \hat{z} - Re \tilde{\nabla} \tilde{h}^* + \tilde{\nabla}^2 \tilde{u} \quad (17)$$

where \hat{z} is the vertical unit vector. The transport equation becomes

$$Pe \left(\frac{\partial \tilde{C}}{\partial \tilde{t}} + (\tilde{u} \cdot \tilde{\nabla}) \tilde{C} \right) = \tilde{\nabla}^2 \tilde{C}. \quad (18)$$

2.2. Finite element numerical simulation

The system of joint Eqs. (8), (12), and (14) are solved for the fracture geometry described in Section 2.1.1 using a finite element analysis.

2.2.1. Mesh

The finite elements numerical simulation is conducted with the software (Comsol Multiphysics, 2009), in two dimensions and using Lagrange-quadratic elements. Flow and transport are solved on the same 2D mesh, made of triangular elements with a maximum side length fixed to $a/20$. The mesh is statistically isotropic. A typical mesh contains about 76,000 triangular elements for a $5 \cdot 10^{-3} \times 0.5$ m² fracture. In order to minimize numerical diffusion, it is more refined in the vicinity of the fracture walls, as well as where the initial solute concentration gradients are high, as shown in Fig. 1.

Note that the mesh remains identical throughout the whole experiment: the fine meshing around the injection line remains though it is only useful at initial times; at larger times it results in little additional cost in computing time, while fine meshing of high concentration zones is not needed anymore since concentration gradient are much less important than at $t = 0^+$.

2.2.2. Initial and boundary conditions

The flow is first solved for the initial concentration field, from Eq. (12), and (14). The initial concentration is defined so as to correspond to a line injection: it is uniform in the vertical direction and has Gaussian longitudinal variations:

$$\forall z \quad C^{(i)}(x, z) = C_0 \exp \left(-\frac{(x - \bar{x})^2}{2\sigma_{(i)}^2} \right) \quad (19)$$

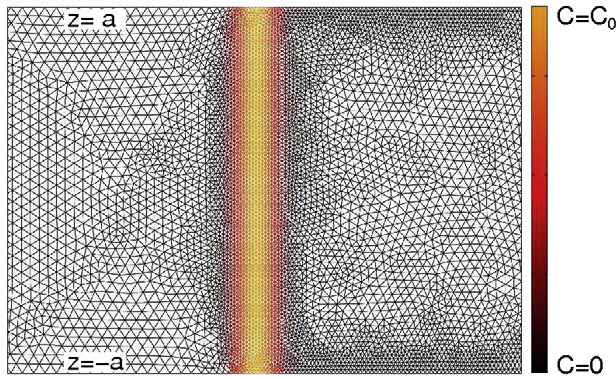


Fig. 1. Close view of the left end of the finite element mesh, as defined for a fracture of aperture 5 mm and length 0.5 m. The mesh lines are colored according to the initial concentration distribution $C(i)$ (as defined by Eq. (19)), which shows the mesh refinement around the initial solute maximum concentration line. The longitudinal root mean square of the initial concentration distribution is $\sigma(i) = 0.2357$ mm. The mesh was generated using the Comsol Multiphysics (2009) software.

where $\sigma(i)$ is the Gaussian standard deviation and C_0 is the maximum initial concentration. At each time step, concentrations are solved for the velocity field obtained at the previous time step, and a new iteration on the flow calculation is performed from the newly-computed concentration field, etc.

The boundary conditions for the simulation are chosen as follows:

- (i) A Poiseuille profile Eq. (9) corresponding to the desired volumetric flow is imposed on the inlet boundary. The boundary condition on the outlet cross-section is set to a constant pressure line, which is equivalent to also assuming an unperturbed flow profile at the outlet, but allows the simulation to adjust the pressure drop throughout the fracture to suit the imposed inlet volumetric flow.
- (ii) A constant null concentration is imposed on the inlet boundary, while the outlet boundary is chosen as a *convective boundary*, that is, with a Neumann condition on the gradient component normal to the boundary: $\partial C / \partial n = 0$.

The Dirichlet boundary conditions imposed on velocity and concentration, as well as the Neumann condition on the concentrations at the outlet, are all justified as long as there is no solute in the vicinity of the inlet and outlet boundaries, which is a valid assumption. Indeed, on the one hand, since the injection line has a width of about $a/10$ and is positioned at a length from the inlet larger than a , no significant solute concentration reaches the inlet boundary at any time during the experiment. On the other hand, the simulations are only run as long as no significant solute concentration has reached the outlet. The fracture length is chosen as large as possible with the available computer power; the fracture aspect ratio is typically of 10^2 to 10^3 . Consequently, the largest times investigated are of the order of the characteristic time t_c at which the whole cross-section has been probed by molecular diffusion (see Section 1).

2.2.3. Control parameters

According to Eqs. (17) and (18), all numerical experiments corresponding to the same set of Reynolds, Péclet, and advective Archimedes number exhibit the same flow and transport in dimensionless coordinates, provided that the initial and boundary conditions are also identical in dimensionless coordinates. The latter constraint imposes that $\sigma(i)$ scale identically with a in all experiments.

In order to investigate a large range of transport behaviors, we therefore need to be able to vary the Reynolds, Péclet and advective Archimedes number independently from each other. The parameters that can be changed in our numerical simulations are the aperture $2a$, the molecular diffusion coefficient D_m , the mean flow velocity (specific discharge) \bar{u} and the maximum initial concentration C_0 . The carrier liquid is always chosen to match water's viscosity and density ($\nu = 10^{-6}$ m²/s). Therefore, the $2a\bar{u}$ factor controls the Reynolds number, while the molecular diffusion coefficient can be varied in order to vary the Péclet number at fixed Re and $\mathcal{A}r^*$. The Reynolds and Péclet numbers being fixed, that is, $2a\bar{u}$ and D_m being fixed, the advective Archimedes number $\mathcal{A}r^*$ is controlled by the ratio of the reference concentration to the cubic power of the average velocity, C_0/\bar{u}^3 see Eq. (15).

Note that because we have dimensionalized our simulation with respect to an experimental configuration, we address Reynolds numbers that are somewhat too high (close to unity) for the Stokes conditions to be rigorously fulfilled. Since the flow lines remain very close to straight lines, however, and as the Reynolds number is around unity, the non-linear terms in the Navier–Stokes should not have much influence on the transport process. Therefore it is the Péclet and advective Archimedes numbers that control transport, in contrast to the classic Taylor–Aris problem for which the Péclet alone matters (no density effects). But since we simulate the full Navier–Stokes equations for Reynolds number that are not much smaller than 1, we indicate the value of the Reynolds number for each simulation, in what follows.

2.3. Characterization of the simulated concentration

The displacement and dispersion of the solute cloud are characterized by computing the longitudinal position of its center of mass, its longitudinal variance and its apparent longitudinal dispersion. The horizontal position of the center of mass is computed as

$$x_G(t) = \frac{1}{M} \int \int_{\Omega} x C(x, z, t) dx dz \quad (20)$$

where $M = \int \int_{\Omega} C(x, z, t) dx dz$, ($\forall t$) is the (constant) total solute mass, and Ω denotes the whole fracture volume. The total solute mass is related to the parameters of the initial solute concentration Eq. (19) through $M = \sqrt{2\pi} C_0 \sigma(i) (2a)$. The cloud's longitudinal variance is obtained as

$$\nu_x(t) = \frac{1}{M} \int \int_{\Omega} (x - x_G)^2 C(x, z, t) dx dz \quad (21)$$

and the apparent longitudinal dispersion coefficient derived from it as

$$D_a(t) = \frac{1}{2} \frac{d\mathcal{V}_x}{dt}. \quad (22)$$

Note that the term *dispersion* denotes the variance \mathcal{V}_x at all places it is used.

The mean cross-sectional concentration $\bar{C}(x, t)$ is computed according to

$$\bar{C}(x, t) = \frac{1}{2a} \int_{-a}^a C(x, z, t) dz. \quad (23)$$

Note that \mathcal{V}_x is also the spatial variance of \bar{C} :

$$\mathcal{V}_x(t) = \frac{2a}{M} \int_{-\infty}^{\infty} (x - x_G)^2 \bar{C}(x, t) dx \quad (24)$$

2.4. Validation of the numerical scheme

The numerical simulation has been validated using a fracture with an aspect ratio of 100, a Reynolds number of 2.5, and no density effects.

2.4.1. Pure diffusive transport

A solute cloud with a z -independent distribution as defined by Eq. (19) is initially present with its maximum positioned at half the fracture length. The Gaussian pulse is then monitored as it widens through molecular diffusion. The dispersion coefficient is measured from successive values of the horizontal variance of the concentration field, using Eqs. (21) and (22). The simulation was run for various values of the imposed molecular diffusion coefficient D_m , between $5 \cdot 10^{-9}$ and 10^{-8} m²/s, which corresponds to the range that we consider in what follows. The measured values were found to oscillate in time around the imposed molecular diffusivity with a maximum deviation from the mean of 0.3% in the worst cases. Obviously, the error on an estimate for the dispersion coefficient obtained from fitting a straight line to the time evolution of the longitudinal variance is several orders of magnitude lower.

2.4.2. Advection by a uniform velocity field

In this case, the only dispersive mechanism is molecular diffusion, but the solute cloud is advected by a uniform velocity field with respect to the numerical mesh. Both x_G and D_a Eqs. (20)–(24) are monitored in time. Several simulations were run with different molecular diffusion coefficients, in order to test the Comsol solver near the limit of pure advective transport. If molecular diffusion is too low, then numerical diffusion is expected to be visible; indeed, unphysical oscillation of the data are seen at $D_m \lesssim 1.0 \cdot 10^{-9}$ m²/s, which restricts the range of available Péclet numbers to $Pe \lesssim 2500$. For Péclet numbers in this range, the maximum instantaneous error between the measured velocity of the cloud, dx_G/dt , and the imposed uniform velocity was measured to 0.05%, while the maximum instantaneous error on D_a was found to be smaller than 0.1%. Note that this limitation on the large available Péclet

is the most important limitation of the simulation, since molecular diffusion coefficients of solute in water are usually close to 10^{-9} m²/s.

2.4.3. The classic Taylor–Aris dispersion problem

The dispersion of a passive solute advected by a parabolic velocity profile and submitted to molecular diffusion has been studied prior to addressing the influence of density contrast on the transport process.

The solute cloud is initially distributed along a vertical line (following Eq. (19)), which rapidly deforms into a boomerang shape at small times due to the dominant advection of the solute line by the parabolic velocity profile. At asymptotic times it transforms into a wider z -independent Gaussian profile. See the insets in Fig. 1. The cloud's position with respect to a frame moving at the mean fluid velocity is expected to tend to a constant value at long times (Taylor, 1953; Aris, 1956); if in addition the initial solute concentration is homogeneous in the directions transverse to flow, which is the case here, the asymptotic constant shift with respect to the moving frame is zero (Aris, 1956). The solute cloud position was indeed observed to evolve as $x_G = \bar{u} t$ in our simulation.

Adapting an analysis from Chatwin, (1976, 1977), we understand that longitudinal molecular diffusion is expected to be the dominant effect at very short times, after which the interaction between advection and transverse diffusion takes over. Indeed, we notice that the typical longitudinal distance travelled by the solute due to longitudinal diffusion during a duration δt is $l_{LD} = (D_m \delta t)^{1/2} = a \delta \tau^{1/2}$, where $\delta \tau = \delta t / t_c$ is the dimensionless duration. A similar distance travelled vertically from the position $z = 0$ brings the solute onto a flow line in which the advecting velocity that it is subjected to is smaller than what it was at $z = 0$ by $(3/2) \bar{u} \tau$, so that the relative longitudinal distance travelled horizontally due to the coupled effect of advection and transverse molecular diffusion during δt is $l_{ATD} = (3/2) \bar{u} \tau \delta t = -(3/4) a Pe \delta \tau$; $|l_{ATD}|$ is much smaller than $|l_{LD}|$ at very short times, and the time at which they are equal scales as $Pe^{-1/2}$. Therefore, the apparent dispersion coefficient (computed from Eq. (22)) should go to the molecular diffusion coefficient at very short times. It is subsequently expected to increase and reach the Taylor–Aris asymptotic dispersion coefficient $D_{T.A.}$ (given by Eqs. (1) and (2)) for $\tau = t / t_c \approx 1$. This behavior is well reproduced by the analytical solution of Eq. (3), which the time evolution of D_a observed in the simulation should match. As shown in Fig. 2 for $Re = 2.5$ and $Pe = 250$, the agreement between the two is satisfying.

Successive spatial profiles of the mean cross-sectional concentration are shown as solid lines in Fig. 3. At small times the profiles have a very asymmetrical shape, which results from the integration over z of the boomerang shape mentioned above. The skewness decreases in time and goes to 0 at asymptotic times according to $t^{-1/2}$, as predicted by Aris (1956). At time $t = t_c$, the peak asymmetry is observed to be “still noticeable”, as mentioned earlier by Chatwin (1970) for the axisymmetric geometry, but the corresponding apparent dispersion coefficient is already very close to its asymptotic value (Fig. 2).

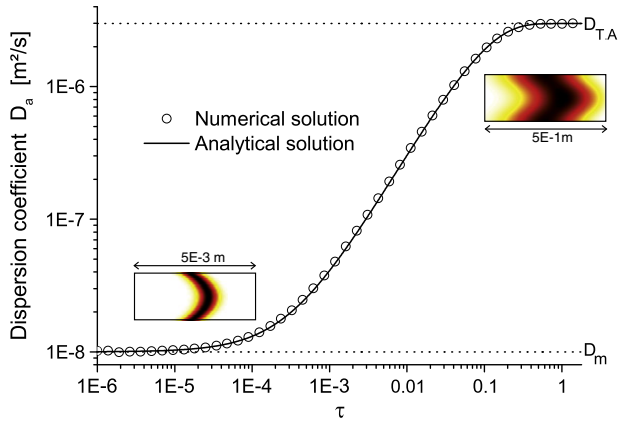


Fig. 2. Evolution of the apparent dispersion coefficient D_a as a function of the reduced time $\tau = t/t_c$ for $Re = 2.5$ and $Pe = 250$, when buoyancy effects are not taken into account. The analytical solution from Eq. (3) is plotted as a solid line on top of the points obtained from the numerical simulation. The insets show a close view of the concentration field at $\tau = 5.0 \cdot 10^{-3}$ and $\tau = 1.0$, respectively.

3. Results

3.1. Mechanism of the impact of buoyancy on pre-asymptotic transport

Fig. 4 provides a qualitative picture of the coupled time evolutions of concentrations and velocities during a simulation at $Re = 2.5$ and $Pe = 250$. The (a) labels denote maps of the concentration field obtained with an advective Archimedes number of 5, that is, for a quasi-negligible impact of density currents upon flow and transport; these maps display an evolution of the concentration field that is quasi-identical to the configuration studied in Section 2.4.3. The (b) labels also denote maps of the concentration field, but for $Ar^* = 1920$. The coupling between flow and transport through the non-stationary density contrasts is strong, and a

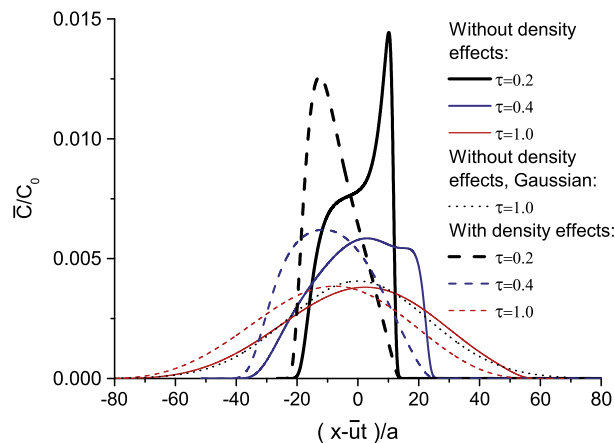


Fig. 3. Spatial profiles of the mean cross-sectional concentration \bar{C} , for three different reduced times $\tau = t/t_c = 0.2$, $\tau = 0.4$, and $\tau = 1.0$. The solid lines have been obtained without any effect of density contrasts on transport; the dashed lines correspond to simulations run with $Ar^* = 1920$; in particular, those for $\tau = 0.4$ and $\tau = 1.0$ correspond to the concentration maps shown in Fig. 4(b) (respectively, B and C).

comparison with (a) maps shows how the more concentrated “body” of the solute plume falls down to the lower fracture wall at early times, where it spreads longitudinally due to its collision with the wall (Fig. 4(A-b), $\tau = 2 \cdot 10^{-3}$). This initial behavior is typically density-driven. At larger times it is dispersed towards the center plane of the fracture again (Fig. 4 (B-b), $\tau = 0.4$); at $\tau = 1.0$, concentration fields are very similar for $Ar^* = 5$ and $Ar^* = 1920$ (Fig. 4(C-a) and (C-b)). The \bar{C} spatial profiles corresponding to maps (b) (B–C) are shown as dashed lines in Fig. 3, together with the profiles obtained under identical conditions but without buoyancy effects on flow and transport (see Section 2.4.3). Interestingly enough, the skewnesses of the dashed lines is positive: negative buoyancy has been mostly active at short times, and it has been quite efficient at limiting the longitudinal advective spreading that is responsible for the negative skewnesses of the \bar{C} profiles obtained for $Ar^* = 0$. A Gaussian profile with a variance equal to that of $\bar{C}^{(Ar^*=0)}(\tau = 1)$ is shown in Fig. 3 as well; at time $\tau = 1$, the solute that has been impacted by buoyancy effects does not seem much farther away from reaching the asymptotic Taylor–Aris dispersion state than the one that has evolved under the sole effects of advection and dispersion.

The maps denoted (c) show the vertical velocity fields associated with the concentration fields denoted (b); a deviation (not shown here) of the horizontal velocities from the Poiseuille profile is associated to those vertical velocities. Visual comparison between concentrations (b) and vertical velocities (c) shows that the denser fluid is submitted to a downward vertical velocity where solute concentrations are larger, while the vertical velocities are positive outside of this zone of large concentrations. In other words, the secondary currents $\mathbf{u} - \mathbf{u}_x^{(hp)}$ due to density contrasts consist in a sort of convection superimposed to the dominant horizontally-advective Poiseuille flow. The convection cells are better visualized by plotting the norm of the curl of $\mathbf{u} - \mathbf{u}_x^{(hp)}$, which is done in the maps denoted (d) in Fig. 4. Brighter zones correspond to larger clockwise fluid rotations, darker zones to larger counter-clockwise fluid rotations, and the maxima clearly coincide with the boundaries between zones of downward and upward velocities in the (c) maps.

In order to quantify the time-decay of secondary currents and the related vertical advective solute mass transfers, we have plotted the total vertical solute mass flux, Φ_m , as a function of time (Fig. 5). At initial times, a body of solute at concentration C_0 and therefore of mass density $\rho_0 + C_0$, surrounded by the carrier liquid of density ρ_0 , falls down with a velocity that is proportional to its negative buoyancy, and thus to C_0 . The initial vertical solute mass fluxes are therefore proportional to C_0^2 . For that reason, solute mass fluxes have been plotted in Fig. 5 after renormalization by Ar^{*2} . Not only do the plots collapse at small times, but they also collapse when $\tau \gtrsim 1.0$: Φ_m / Ar^{*2} approaches 0 according to a law that is independent of Ar^* .

3.2. First and second moments of the concentration distribution – Delay in the establishment of the asymptotic regime

In the absence of coupling between flow and transport, and for an initial concentration distribution that is uniform in all cross-sections of the fracture, the mean horizontal position

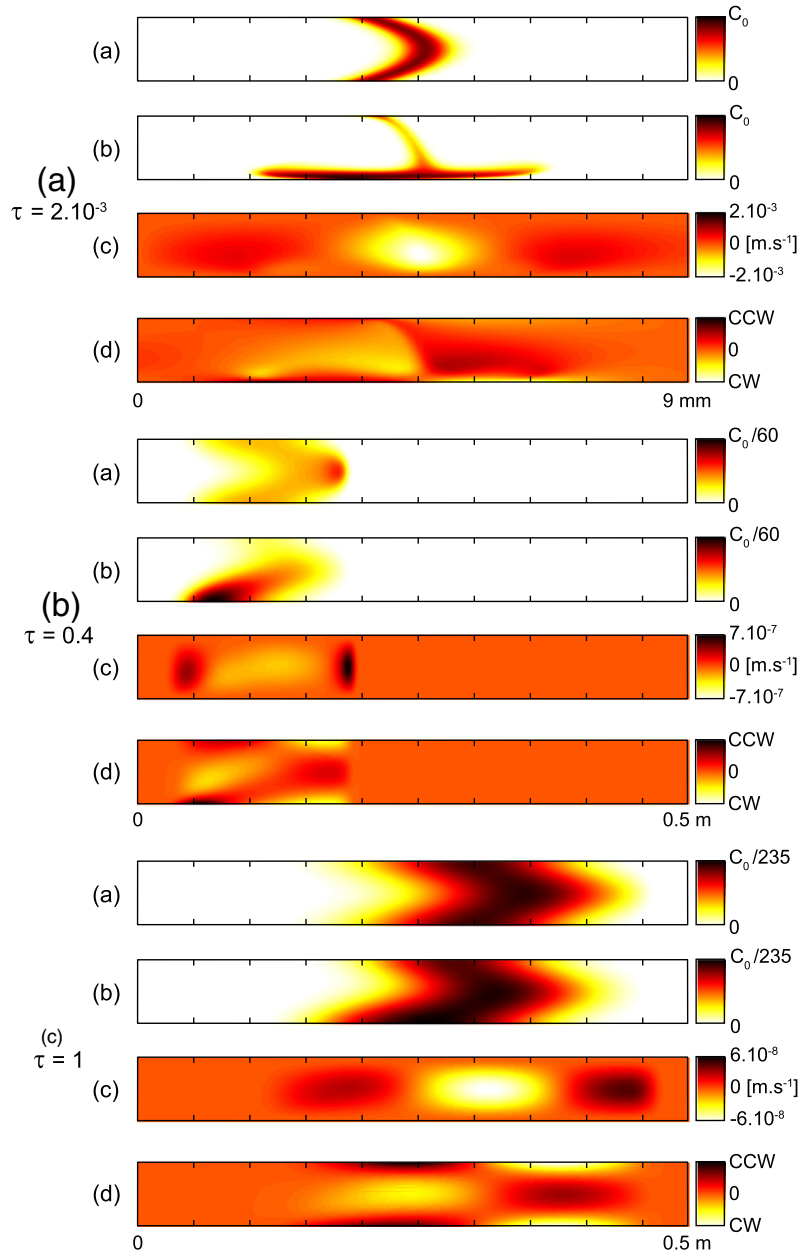


Fig. 4. (a) and (b) are concentration maps for a simulation at $Re = 2.5$ and $Pe = 250$, with $Ar^* = 5$ (a) and $Ar^* = 1920$ (b); (c) are maps of the vertical velocity corresponding to the concentration fields shown in (b); (d) are the corresponding maps of the curl of the velocity deviation from the unperturbed Poiseuille profile, $\|\nabla \cdot (\mathbf{u} - \mathbf{u}_x^{(hp)})\|$, CCW and CW denoting respectively the counter-clockwise and clockwise maxima in the curl values. The four maps are shown at three different times: $\tau = 2 \cdot 10^{-3}$ (A), 0.4 (B) et 1 (C), with a $5 \times$ vertical magnification. In (A), the leftmost first 9 mm of the fracture are visualized; for (B) and (C), the visualized fracture length is 0.5 m.

of the solute cloud, x_G , which we by convention set to 0 at $t = 0$, is expected to travel at the mean cross-sectional fluid velocity \bar{u} at any time (Aris 1956). The deviation from this non-buoyant behavior is shown in Fig. 6(a) for a simulation at $Re = 2.5$ and $Pe = 250$; $X_G = x_G - \bar{u}t$ is plotted as a function of the reduced time for various magnitudes of the buoyancy forces. Between times $\tau = 0.01$ and $\tau = 1$, the solute gets delayed with respect to the fluid, but reaches a constant position $X_G^{(\infty)}$ in the moving frame at long times. This shift in the position of the solute with respect to the moving frame is systematically negative, and can be interpreted as a *buoyant retardation time* $\tau_r = -(X_G^{(\infty)} / \bar{u}) / t_c$ for the center of mass of

the solute cloud to pass at a given horizontal position x . τ_r is plotted as a function of Ar^* in Fig. 7(b), for different simulations at various Péclet numbers. This figure provides a sampling of the $\tau_r(Pe, Ar^*)$ function, which is one important outcome of the impact of buoyancy effects on solute dispersion. τ_r is all the larger as the latter effects are more important (that is, as Ar^* is larger). However, its dependence on the Péclet number exhibits an increasing or decreasing trend, depending on the value of Ar^* .

Fig. 7 shows the evolution in time of the longitudinal variance \mathcal{V}_x (Eq. (24)) for two simulations at $Re = 2.5$, $Pe = 250$ and, respectively, $Ar^* = 2$ and $Ar^* = 1471$. The

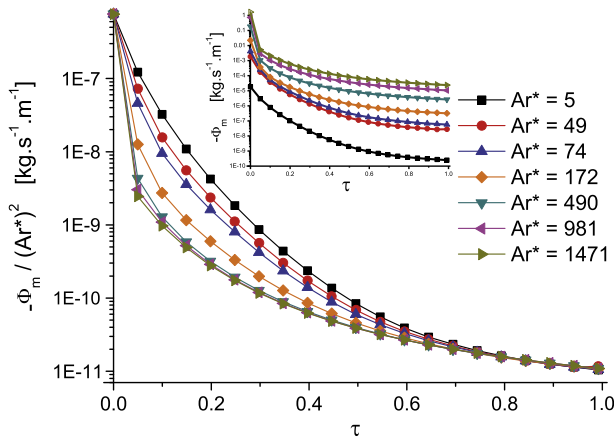


Fig. 5. Evolution in time of the total downward vertical mass flux Φ_m , normalized by Ar^{*2} , for $Re=2.5$ and $Pe=250$, and for different magnitudes of the initial density contrast. All curves have been obtained using the same geometry ($2a=5$ mm). The inset shows the unscaled mass fluxes.

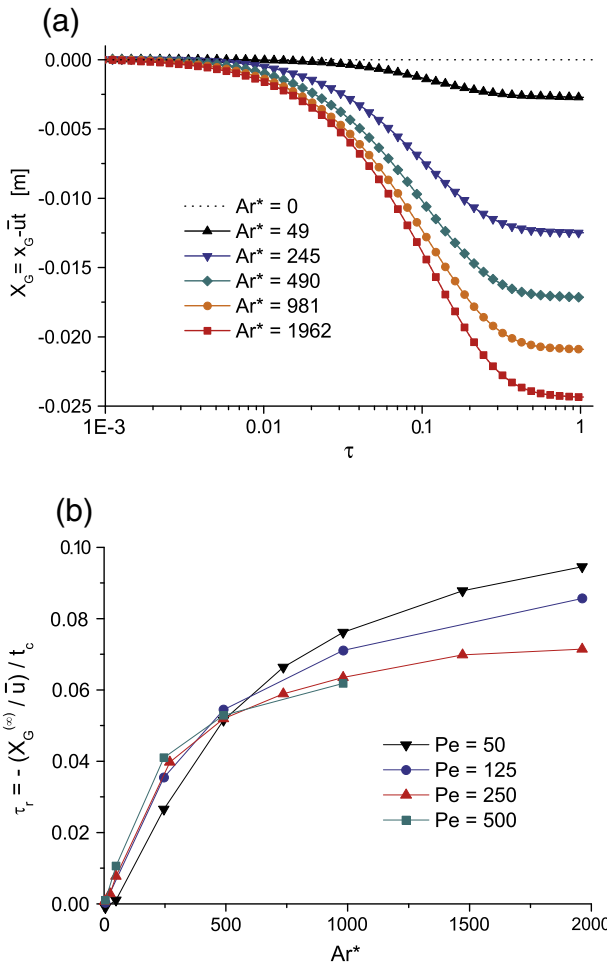


Fig. 6. (a) Horizontal position X_G , with respect to a frame that moves at the mean fluid velocity, of the center of mass of the solute. The origin for the x axis has been set so that the injection line be positioned at $x=0$. $Re=2.5$, $Pe=250$. (b) Dependence of the retardation time $\tau_r = -(X_G^{(c)} / \bar{u}) / t_c$ on the advective Archimedes number Ar^* , for different Péclet numbers.

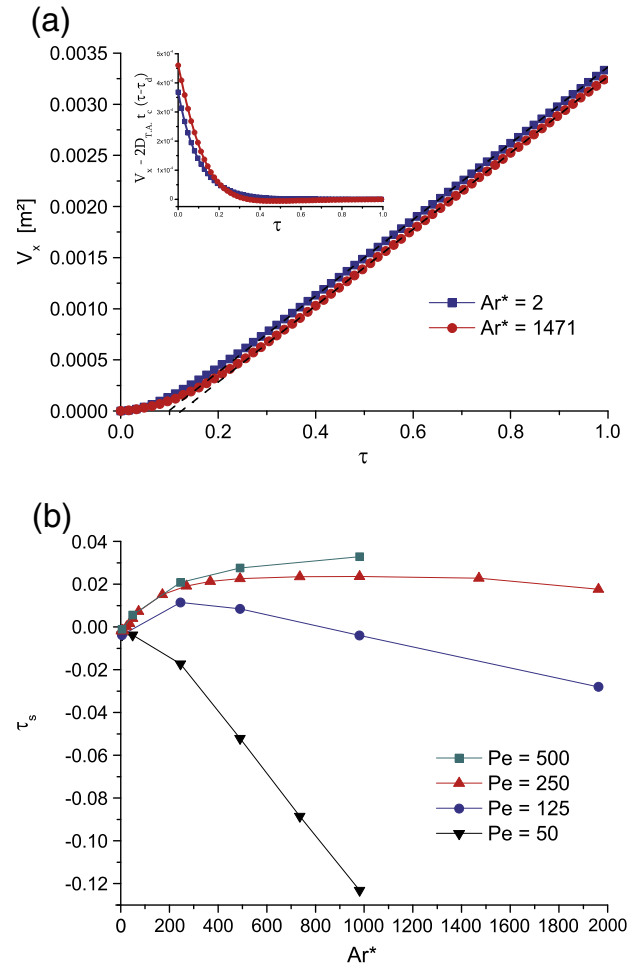


Fig. 7. (a) Time evolution of the horizontal variance ψ_x at $Re=2.5$ and $Pe=250$, for two configurations corresponding respectively to very small and to significant buoyancy effects. The inset shows the approach to the asymptotic straight line. (b) Evolution of the buoyant dispersion establishment time shift, τ_s , as a function of the advective Archimedes number, for four different values of the Péclet number (at $Re=2.5$). The time shift has been obtained as $\tau_s = \tau_d - \tau_d^{(Ar^*=0)}$ from linear fits to the asymptotic behavior of $\psi_x(t)$ plots such as those presented in (a).

asymptotic state is a straight line, as expected (see Section 1); the approach to the straight line is shown in the inset of Fig. 7 (a). Note that the red plot corresponding to $Ar^* = 1471$ in this inset oscillates around the horizontal asymptote, and its asymptotic approach to normality is done by negative values. More generally, the $1/t$ asymptotic approach to normality predicted by Smith (1978) is not observed on a significant time range before $\tau=1$, which suggests that its applicability is reduced to time ranges for which the solute is from a practical point of view already in the asymptotic state. The asymptotic straight line is defined by Eq. (5), and the delay time τ_d from that equation is observed to be different when buoyancy forces impact the flow. We call *dispersion establishment time shift* the extra delay $\tau_s = \tau_d - \tau_d^{(Ar^*=0)}$ caused by buoyancy effects in the establishment of the asymptotic regime. As soon as the solute cloud is examined at times larger than t_c (or, equivalently, reduced times larger than 1), the net effect of significant buoyancy effects existing at short

and intermediate times is this time shift τ_s . A sampling of its dependence, $\tau_s(Pe, Ar^*)$, on the Péclet and advective Archimedes number is presented in Fig. 7. It can be either positive or negative, and its variations as a function of Ar^* are not necessarily monotonous, depending on the Péclet number. But it always decreases systematically with increasing Péclet values (at fixed Ar^*), in contrast to what was observed for the retardation time τ_r presented in Fig. 6(b), and it is consequently positive (respectively, negative) for all Ar^* values, provided that the Péclet number is sufficiently large (respectively, small).

The non-monotonous evolution of τ_s with Ar^* can appear counter-intuitive, yet Fig. 7(b) is well understood as follows. The dispersion establishment time shift τ_s is a measure of how much (and in which direction) the longitudinal widening of the pulse is influenced by density contrasts at short times. The result of this measure is influenced by two opposite effects: (i) the initial phase of density-driven transport, which results in the cloud spreading faster longitudinally due to its meeting with the lower fracture wall (as seen in Fig. 4(A-b) and discussed in Section 3.1), and (ii) the perturbation of the Taylor–Aris dispersion process by density contrasts, which can either delay or promote the longitudinal widening of the cloud (see (Erdogan and Chatwin, 1967)'s arguments in Section 1). The impact of these two effects is all the more important as Ar^* is larger. The former effect (i) always promotes a smaller value of τ_s , and dominates at larger values of Ar^* , making the τ_s vs. Ar^* curve decrease with Ar^* at large enough Ar^* values. On the contrary, the latter effect (ii) promotes either a smaller or a larger value of τ_s , depending on the Péclet, and it is dominant at lower values of Ar^* ; depending on the Péclet, it therefore either makes the time shift τ_s increase or decrease with Ar^* at small enough values of Ar^* .

3.3. Apparent longitudinal dispersion coefficient as a function of time

The apparent longitudinal solute dispersion coefficient D_a , computed from Eq. (22), is shown in Fig. 8(a) and (b) for simulations performed at respective Péclet numbers of 50 and 250 ($Re = 2.5$ for both). For each of these Péclet values, five different magnitudes of the buoyant effects have been considered, ranging from $Ar^* = 49$ to $Ar^* = 1962$.

All curves go to the molecular diffusion coefficient, D_m , at short times. As predicted by Erdogan and Chatwin (1967), they all tend to the Taylor–Aris dispersion coefficient, $D_{T.A.}$, at asymptotically long times; but in contrast to an unproven statement by these authors, the time needed to reach the asymptotic behavior is not greatly enhanced by the buoyant coupling of flow and transport: the $D_a(\tau)$ curves reach the horizontal $D_{T.A.}$ asymptote around $\tau \approx 1$, independently of Ar^* . The manner in which they reach the asymptotic regime, though, depends strongly on Ar^* . If initial solute negative buoyancy is important, a peak in the development curve of D_a can be observed at intermediate reduced times. It is only visible for the larger injected concentrations (larger values of Ar^*), and is due to the secondary vertical buoyancy currents seen in Fig. 4(c) (A–C): they provoke a spreading of the solute over the lower fracture wall, as clearly seen in Fig. 4(A-b). Such effects are typical of density-driven flows, and in the configurations that we study, they are limited in time: as time increases, the

combined effect of advection and cross-sectional molecular diffusion, especially effective in the zones of large shear where gravity has brought the solute cloud body, results in a reduction of the longitudinal dispersion coefficient. The initial spreading over the lower fracture wall is in competition with the initial longitudinal advective spreading, which at these times is the sole responsible for the increase of the dispersion coefficient under $Ar^* = 0$. It is therefore consistent that (i) the peak in the time evolution of the apparent dispersion coefficient is only present for larger Ar^* values, and (ii) that for a given Ar^* value, it is less developed for the configuration in which advection is stronger (Fig. 8(b)). As Ar^* gets closer to 0, the peak disappears and the curve goes to the profile that is known from Section 2.4.3 to be characteristic of non-buoyant Taylor–Aris transport. Note that these peaks also explain the decreasing trend of the plots in Fig. 7(b) at larger Ar^* values (see Section 3.2). Indeed, the plot corresponding to $Ar^* = 1962$ in Fig. 8(a) is already oscillating around its asymptote $D_a = D_{T.A.}$ at $\tau = 10^{-2}$, which means that the corresponding plot of the variance as a function of time (Fig. 7(a)) is already oscillating around its asymptote, so that the $\tau_d \approx 10^{-2}$ while in the absence of density effects it is read in Fig. 8(a) as $\tau_d^{(Ar^* = 0)} \approx 3 \cdot 10^{-1}$, and therefore we can estimate

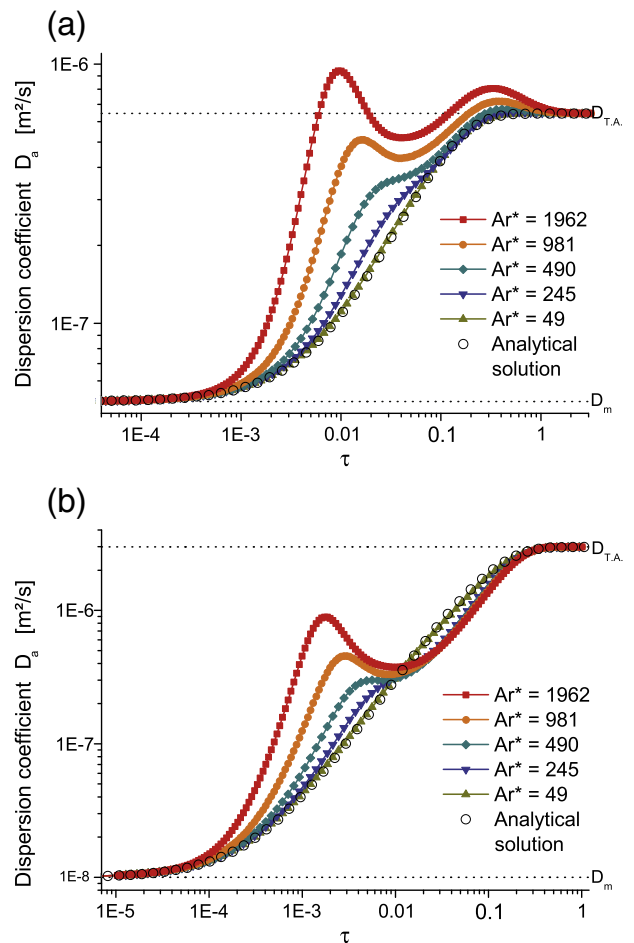


Fig. 8. (a) Evolution in time of the apparent dispersion coefficient D_a at $Re = 2.5$ and $Pe = 50$, for various initial maximum concentrations of the injected solute — (b) same as (a), but under $Pe = 250$. The molecular diffusion has been chosen 5 times larger than in (a), all other control parameters being equal.

$\tau_s < -2.5 \cdot 10^{-1}$, a value that is consistent with the results of Fig. 7(b).

The apparent dispersion coefficients observed in Fig. 8(a) at $Pe = 50$ are all larger at all times than the values corresponding to non-buoyant transport. Those obtained at the higher Archimedes numbers even oscillate around the asymptote, and go to the asymptote by positive values. In other words, the instantaneous dispersion coefficients measured in these configurations are always larger than what they would be if buoyancy had no impact on flow, and their deviation from the non-buoyant value is obviously not monotonous in time.

On the contrary, all dispersion coefficients curves obtained for $Ar^* > 0$ in Fig. 8(b) tend to the asymptote by negative values after crossing the curve that corresponds to non-buoyant transport. This means that depending on the time at which they are measured, instantaneous apparent dispersion coefficients are either larger (at shorter times) or smaller (at longer times) than their non-buoyant counterpart.

3.4. Influence of the Péclet number on the asymptotic dispersion

In this paragraph we address the prediction of Erdogan and Chatwin (1967) relative to the influence of the Péclet number on the dispersion of the solute cloud at long times (see Section 1). The solute longitudinal variance ν_x is two times the primitive of the dispersion coefficient D_a . Since all dispersion coefficients go to the constant Taylor–Aris dispersion coefficient at times $t \geq t_c$, the deviation of $\nu_x(t)$ measured at a given $Ar^* > 0$ from that obtained at $Ar^* = 0$ is constant at times $t \geq t_c$; see also Fig. 7(a) concerning this point. If one considers for example the apparent dispersion coefficients shown in Fig. 8(b) ($Pe = 250$), it appears that, due to the fluctuations of the plots and their crossing of the curve corresponding to non-buoyant transport, the deviation $\nu_x(\tau \geq 1) - \nu_x^{(Ar^*=0)}(\tau \geq 1)$ can be either positive or negative; in this particular case, it may be negative for the lower addressed values of Ar^* , and it is likely to be positive for the larger addressed values of Ar^* . In contrast, for $Pe = 50$ (Fig. 8(a)), the asymptotic variance is always larger than its non-buoyant counterpart.

In Fig. 9(a), we have plotted the quantity $\nu_x - \nu_x^{(Ar^*=0)}$ as a function of time for a series of simulations performed at $Re = 2.5$ and $Ar^* = 960$, varying the Péclet number within the series, between $Pe = 50$ and $Pe = 167$. The asymptotic variance deviation $\nu_x(\tau \geq 1) - \nu_x^{(Ar^*=0)}(\tau \geq 1)$ is indeed observed to decrease monotonously with the Péclet number, and to change sign around a critical Péclet number $Pe_c \approx 134$. This is a confirmation of Erdogan and Chatwin (1967)'s prediction. The critical Péclet number probably depends on the advective Archimedes number, but until now we have not investigated the dependence of Pe_c on Ar^* . Note also that, consistently with the peak seen in Fig. 8, the deviation at intermediate times can be either larger or smaller than what it would be without significant negative buoyancy, and even change sign in time.

In Fig. 9(b), part of the data from Fig. 9(a) is presented in a different manner: the relative variance deviation is plotted as a function of the Péclet number at reduced times $\tau = 0.1, 0.2, 0.4$ and 1.0 . Indeed, a deviation in the solute dispersion from the non-buoyant case is meaningful from an experimental point of view if it is significant with respect to the magnitude of the dispersion. Here, the relative deviations are seen to

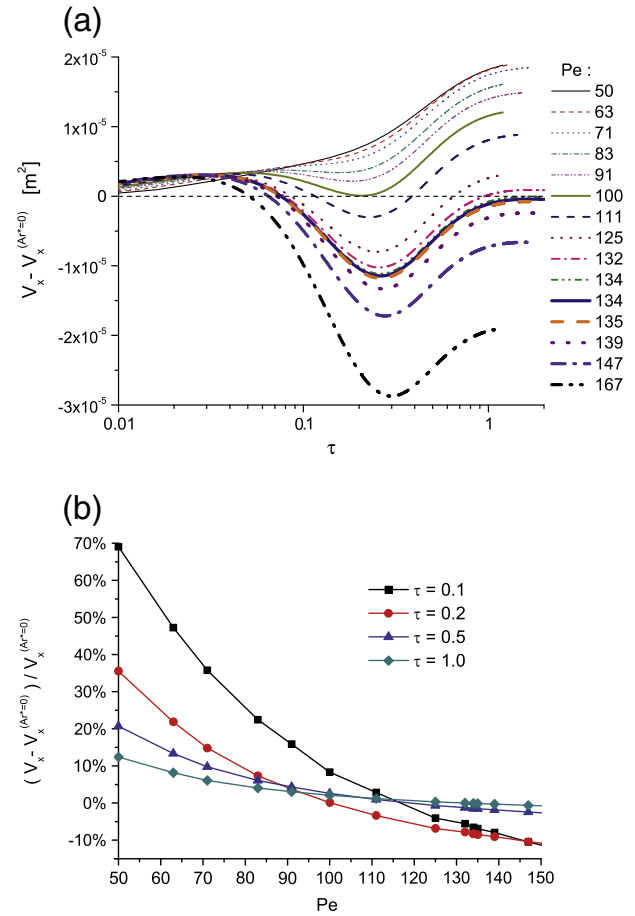


Fig. 9. (a) Time evolution of $\nu_x - \nu_x^{(Ar^*=0)}$ for a solute cloud being transported at $Re = 2.5$ and $Ar^* = 960$, and for various values of the Péclet number. For a Péclet number of ≈ 134 , the dispersion measured at $\tau = 1$ is the same for $Ar^* = 960$ as for buoyancy-free transport. (b) Relative difference between the variance measured at four different times during buoyant transport at $Re = 2.5$ and $Ar^* = 960$, and the one measured at the same times during non-buoyant transport at $Re = 2.5$.

reach above 10% for the smallest investigated Péclet value and $\tau \leq 1$.

Note that the findings from Fig. 9 are consistent with those from Fig. 7(b). In fact, the dispersion establishment time shift τ_s and the deviation from non-buoyant dispersion are related according to: $\nu(\tau \geq 1) - \nu_x^{(Ar^*=0)}(\tau \geq 1) = 2D_{TA} t_c \tau_s$, so that the whole Erdogan and Chatwin (1967) prediction can be interpreted in terms of the behavior of the $\tau_s(Pe, Ar^*)$ function, as discussed in Section 3.2.

3.5. Consequences for the breakthrough curves

Up to now, the solute cloud has been characterized as a function of the spatial coordinate, at given times. All conclusions relevant to these analyses transfer to breakthrough curves, which are time profiles recorded at given spatial coordinates. The retardation time τ_r measured in Section 3.2 will be seen as a delay in the arrival time of the center of mass of the breakthrough curves, with respect to the corresponding configuration with no buoyant effects. The width of the breakthrough peaks will also be either smaller or larger (depending on the Péclet number) than what it would be if

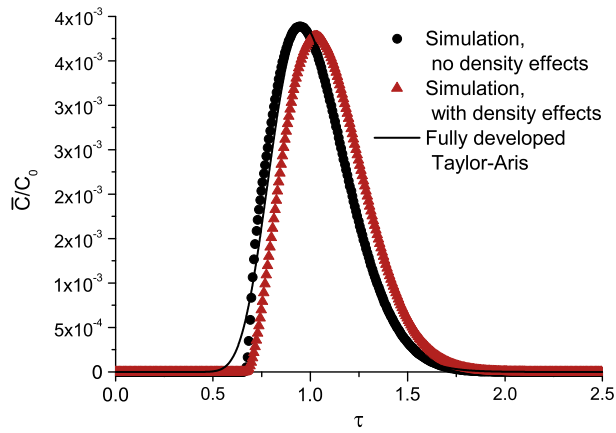


Fig. 10. Breakthrough curves recorded at $x = \bar{u}t_c$ in the simulations addressed in Fig. 5(a) (red triangles) and in the corresponding simulations without buoyancy (black disks): $Re = 2.5$, $Pe = 250$, $Ar^* = 0$ or $Ar^* = 1920$.

buoyancy did not impact the flow and transport processes. Since the total solute mass is conserved, the peak intensity will be modified consistently. An example of this impact of buoyancy forces on breakthrough curves is shown in Fig. 10, from the same data as previously presented in Fig. 7(a). The breakthrough curves have been computed at the distance $x = \bar{u}t_c$ that the center of mass of the solute reaches at reduced time $\tau = 1$ in the case of non-buoyant transport. The black disks represent the breakthrough curve obtained in the configuration without buoyancy effects. At $\tau = 1$ the vertical concentration profiles are not completely uniform yet in the fracture, so that there is still some deviation of the spatial shape of the $\bar{C}(z, t)$ profile from the Gaussian shape that is characteristic of the fully-developed Taylor–Aris regime. We show this deviation in Fig. 10 by plotting on top of the black disks the breakthrough curve that would correspond to a fully-developed spatially-Gaussian pulse. This also shows that the tailing of all breakthrough curves is limited. The breakthrough curve corresponding to buoyant transport (red triangles) is delayed with respect to the other one, and slightly broader.

4. Conclusions and discussion

We have studied numerically the dispersion of a finite volume of solute along a horizontal plane fracture, under the combined effect of molecular diffusion, advection by a flow at an imposed specific discharge, and buoyancy forces. We have investigated the impact of buoyancy effects on the otherwise well-known pre-asymptotic Taylor–Aris dispersion process. The asymptotic regime of Taylor–Aris effective dispersion coefficient, $D_{T,A}$, was reached at large times, but negative buoyancy was found to impact the flow at short and moderate times, leading to a persistent impact on transport, including at asymptotic times. This impact can be accounted for by two characteristic time durations: (i) a systematically positive retardation time $\tau_r t_c$ (with respect to the frame moving at average fluid velocity) for the gravity center of the solute to pass at a given position, and (ii) a time shift $\tau_s t_c$ in the establishment of the asymptotic linear increase of the longitudinal dispersion/variance. The dimensionless retardation time

τ_r is all the more important as the advective Archimedes Ar^* number is large, while the dimensionless time shift τ_s can either be positive or negative, depending on the Péclet number, and does not necessarily depend monotonously on Ar^* .

Practically, for given flow conditions (e.g., Reynolds number), the impact of buoyancy effects on transport at times larger than t_c is all contained in the functions $\tau_r(Pe, Ar^*)$ and $\tau_s(Pe, Ar^*)$. One point that we have not discussed until now is that the delay time τ_d in Eq. (5) probably depends on the initial solute distribution, that is, τ_d depends on the nature of the injection, and not only does its Taylor–Aris part depend on it, but its part due to buoyant secondary currents also does. Consequently, the functions $\tau_r(Pe, Ar^*)$ and $\tau_s(Pe, Ar^*)$ can probably not be obtained in a universal manner, even numerically.

It is important to notice that, in contrast to a previously published statement (Erdogan and Chatwin, 1967), the time needed for the Taylor–Aris dispersive regime to be reached asymptotically is of the same order of magnitude for any value of Ar^* ; in other words, the apparent longitudinal dispersion coefficient $D_a(\tau)$ curves reach the horizontal asymptote at $D_{T,A}$ around $\tau \sim 1$, independently of the value of Ar^* . The prediction by the same authors that the dispersion should be either larger (respectively, smaller) compared with the non-buoyant case if the Péclet number is sufficiently small (respectively, large), was verified for times larger than t_c . When initial solute buoyancy is important, a peak can be present in the time evolution curve of D_a at intermediate times, which in some cases reverses the influence of the Péclet number for this range of times. More generally, Erdogan and Chatwin (1967)'s theoretical study was based on a series development in the small non-dimensional parameter G , the definition of which is given in Eq. (4). We have monitored in time the value of $|\max[G(x)]|$ for all the simulations that we have run. It was found to decrease continuously with time, and, for advective Archimedes numbers larger than ≈ 100 , to be larger than 0.1 at all times shorter than $0.1 t_c$. In other words, the theory cannot describe what happens at times at which significant density currents impact the flow; therefore it cannot predict the $\tau_r(Pe, Ar^*)$ and $\tau_s(Pe, Ar^*)$ functions, even though it provides numerically-computable corrective terms to the non-buoyant dispersion theory.

The characteristic times τ_r and τ_s translate onto breakthrough curves (BC) in terms of a potential delay in the arrival times and broadening of the temporal widths, but in no way in terms of a change in the curve tailing. But are τ_r and τ_s and their consequences in terms of dispersion relative increase/decrease significant? The delay in arrival time is going to be significant if $\tau_r \cdot t_c$ (with $t_c = a^2/D_m$) is significant. This delay does not depend on the travelled distance as soon as that distance is larger than a length of about $\bar{u} t_c$. The difference in peak width, on the other hand, is controlled by the characteristic time $\tau_s t_c$, since the spatial variance of the solute cloud at time $\tau \geq 0.5$ can be expressed as $2D_{T,A} t_c \left(\tau - \tau_d^{(Ar^* = 0)} - \tau_s \right)$. The difference in the BC widths will appear significant or not relative to the width itself, which grows continuously in time; hence, the ratio $\tau_s / \left(\tau - \tau_d^{(Ar^* = 0)} - \tau_s \right)$ will be a measure of the relative spatial width difference, which then will translate into the

temporal width of the BC. In the simulations presented in this study, the relative error on the variance (and consequently, on the inferred dispersion coefficient) is of the order of 10% at a distance $\bar{u}t_c$ from the injection; at longer distances, it decreases monotonously due to the linear increase in longitudinal variance. So one condition for buoyancy effects to be significant is that the distance $\bar{u}t_c$ be long enough for it to be the distance between a pumping well and an observation well. Under appropriate conditions, it could reach up to 5 to 10 m. In addition to this systematic effect, the magnitude of the time shift τ_s can depend non-monotonically on the density contrast between the injected fluid and water, depending on the Péclet number.

In any case, there is a possibility that primary buoyancy effects can cause practical misinterpretation of field data, even in the absence of wall roughness-related density effects (Tenchine and Gouze, 2005). The inferred effective dispersion coefficient of the medium (and therefore, the inferred geometrical properties, for example the fracture aperture), would either be underestimated or overestimated, depending on the Péclet number. Péclet number values ranging from unity to a few hundreds are realistic, depending on the material and the type of flow (natural or forced through pumping); see for example (Novakowski et al., 2004, 2006), where the same authors measure velocities through a single fracture in two different materials, and obtain velocity corresponding to the two ends of that Péclet range. In any case, it appears that field studies carried out on geometries involving very open fractures would potentially be affected by the type of buoyancy effects that we have addressed in this paper.

There are several reasons why it is difficult to draw definitive conclusion in terms of a quantitative prediction of the impact of buoyancy. The first one is that in our numerical model molecular diffusion coefficient values under $5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ are difficult to impose, so that the Péclet numbers that we consider are somewhat limited towards large values. If we consider that the D_m values used here are, say, 5 times larger than what would be the most realistic, it is not easy to extrapolate from our quantitative results: a more realistic characteristic time t_c would then be 5 times larger than the one in our simulation, and so would $\bar{u}t_c$, but a contrario D_{TA} would also be 5 times larger, so that the absolute change in the dispersion (variance) due to buoyancy effects would have to be 5 times larger in order to be measurable. Another reason is that the buoyancy effects that take place in the vertical thickness of a horizontal fracture, as those we have addressed in this manuscript, will always coexist with the buoyancy effects related to fracture wall roughness and to the resulting flow channeling. Indeed, solutes tend to be advected more efficiently along preferential flow paths in the fracture plane, and, furthermore, solutes with a negative buoyancy will tend to follow a path of the lowest altitude along the fracture lower wall (Tenchine and Gouze, 2005). As soon as the solute distribution is homogeneous along the fracture thickness, the latter effect is expected to be greatly reduced, even if heterogeneities in solute concentration are still present horizontally in the fracture plane. In other words, when the solute has travelled a distance $\bar{u}t_c$, we expect its concentra-

tion to be homogeneous along the vertical direction, so that if any anomalous transport is measured, it is due to heterogeneities of the advecting flow in the fracture plane.

References

- Abarca, E., Carrera, J., Sánchez-Vila, X., Dentz, M., 2005. Anisotropic dispersive Henry problem. *Adv. Water Resour.* 30, 913–926.
- Abarca, E., Carrera, J., Sánchez-Vila, X., Voss, C.I., 2007. Quasi-horizontal circulation cells in 3d seawater intrusion. *J. Hydrol.* 339, 118–129.
- Aris, R., 1956. On the dispersion of a solute in a fluid moving through a tube. *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 235 (1200), 67–77.
- Barton, N.G., 1976b. The dispersion of a buoyant solute in laminar flow in a straight horizontal pipe. Part 1. Predictions from Erdogan & Chatwin (1967) paper. *J. Fluid Mech.* 74, 81–89.
- Barton, N.G., 1976a. The dispersion of a buoyant solute in laminar flow in a straight horizontal pipe. Part 2. The approach to the asymptotic state. *J. Fluid Mech.* 74, 91–112.
- Barton, N.G., 1983. On the method of moments for solute dispersion. *J. Fluid Mech.* 126, 205–218.
- Becker, M.W., 2003. Effect of tracer buoyancy on tracer experiments conducted in fractured crystalline bedrock. *Geophys. Res. Lett.* 30, 1116.
- Berkowitz, B., Zhou, J., 1996. Reactive solute transport in a single fracture. *Water Resour. Res.* 32 (4), 901–913.
- Chatwin, P.C., 1970. The approach to normality of the concentration distribution of a solute in a solvent flowing along a straight pipe. *J. Fluid Mech.* 43 (2), 321–352.
- Chatwin, P.C., 1976. The initial dispersion of contaminant in Poiseuille flow and the smoothing of the snout. *J. Fluid Mech.* 77 (3), 593–602.
- Chatwin, P.C., 1977. The initial development of longitudinal dispersion in straight tubes. *J. Fluid Mech.* 80 (1), 33–48.
- Comsol Multiphysics, 2009. URL <http://www.comsol.com/products/multiphysics/>.
- d'Angelo, M.V., Auradou, H., Allain, C., Rosen, M., Hulin, J.-P., 2008. Dispersion enhancement and damping by buoyancy driven flows in two-dimensional networks of capillaries. *Phys. Fluids* 20, 034107.
- Dentz, M., Carrera, J., 2007. Mixing and spreading in stratified flow. *Phys. Fluids* 19, 017107.
- England, P., McKenzie, D.P., 1982. A thin viscous sheet model for continental deformation. *Geophys. J. R. Astron. Soc.* 70, 295–321.
- Erdogan, M.E., Chatwin, P.C., 1967. The effects of curvature and buoyancy on the laminar dispersion of solute in a horizontal tube. *J. Fluid Mech.* 29, 465–484.
- Flowers, T.C., Hunt, J.R., 2007. Viscous and gravitational contributions to mixing during vertical brine transport in water-saturated porous media. *Water Resour. Res.* 43, W01407.
- Gill, W.N., Sankarasubramanian, R., 1970. Exact analysis of unsteady convection diffusion. *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 316, 341–350.
- Michel, L., 2009. Transport en fracture et interaction avec la matrice : une expérience analogique. Ph.D. thesis, Université de Rennes 1.
- Novakowski, K.S., Bickertno, G., Lapcevic, P., 2004. Interpretation of injection-withdrawal tracer experiments conducted between two wells in a large single fracture. *J. Contam. Hydrol.* 73, 227–247.
- Novakowski, K.S., Bickertno, G., Lapcevic, P., Voralek, J., Ross, N., 2006. Measurements of groundwater velocity in discrete rock fractures. *J. Contam. Hydrol.* 82, 44–60.
- Reejhsinghani, N.S., Gill, W.N., Barduhn, A.J., 1962. Experiments in horizontal tubes including observations. *A. I. Ch. E. J.* 12, 916.
- Smith, R., 1978. Asymptotic solutions of the Erdogan–Chatwin equation. *J. Fluid Mech.* 88, 323–337.
- Smith, R., 1990. Buoyancy effects upon lateral dispersion in open-flow channel. *J. Fluid Mech.* 78, 761–779.
- Stokes, A.N., Barton, N.G., 1990. The concentration distribution produced by shear dispersion of solute in Poiseuille flow. *J. Fluid Mech.* 210, 201–221.
- Taylor, G.I., 1953. Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube. *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 219 (1137), 186–203.
- Taylor, G.I., 1954a. Conditions under which dispersion of a solute in a stream of solvent can be used to measure molecular diffusion. *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 225 (1163), 473–477.
- Taylor, G.I., 1954b. Diffusion and mass transport in tubes. *Proc. Phys. Soc. London* 67 (12), 857.
- Tenchine, S., Gouze, P., 2005. Density contrast effects on tracer dispersion in variable aperture fractures. *Adv. Water Resour.* 28, 273–289.
- Wooding, R.A., 1960. Instability of a viscous liquid of variable density in a vertical Hele-Shaw cell. *J. Fluid Mech.* 9 (2), 183–192.

Chapitre 4

Impact des effets inertiels sur le transport d'un soluté passif dans un chenal d'ouverture périodique

Lorsque les variations spatiales d'ouverture deviennent grandes par rapport à l'ouverture moyenne, les effets de ces fluctuations sur l'écoulement et le transport ne sont plus négligeables et l'hypothèse de chenal lisse n'est plus acceptable. Les lignes de courant ne sont plus rectilignes. Localement, elles ne sont pas toujours parallèles au gradient moyen de pression. La longueur du parcours sera aussi plus longue. Le temps de parcours peut, quant à lui, être plus court ou plus long, selon la ligne d'écoulement choisie. Enfin, dans certaines conditions d'écoulement, des zones de recirculation peuvent apparaître. Le transport est impacté par cette complexité de l'écoulement.

Dans ce chapitre, nous présentons l'étude de l'écoulement et du transport dans une telle géométrie d'ouverture périodique et plus particulièrement dans des conditions où les effets inertiels ne sont plus négligeables. Le terme « zone de recirculation » indique une zone où les lignes de courants sont fermées. Incidemment, l'écoulement y est généralement lent. La formation de zones de recirculation est clairement illustrée en figure 4.4. Le phénomène est analogue aux zones de contre-courants dans les rivières.

4.1 Justification du choix de la géométrie

4.1.1 Description de la géométrie d'un canal d'ouverture périodique

La modélisation est en 2 dimensions. Ce choix permet de maintenir les temps de calculs suffisamment courts pour qu'une gamme importante de jeux de paramètres puissent être testés. Afin de conserver une approche simple, la géométrie de la fracture est définie par une distribution spatiale sinusoïdale des demi-ouvertures locales :

$$h(x) = \bar{h} + h' \sin\left(\frac{2\pi x}{L}\right) \quad (4.1)$$

avec h la demi ouverture locale à la position x , \bar{h} la demi ouverture moyenne, h' l'amplitude maximum de la variation d'ouverture et L la longueur d'une cellule (figure 4.1).

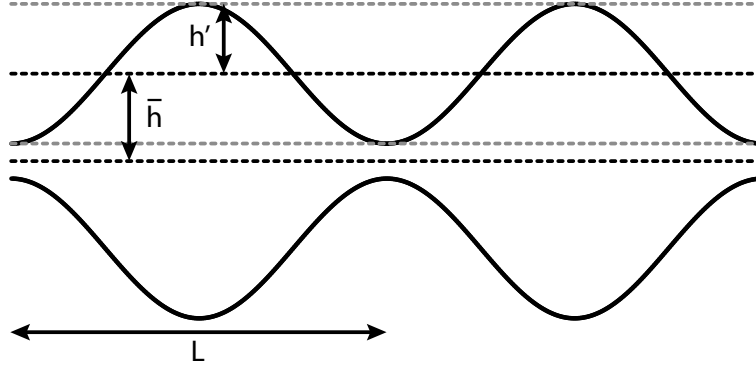


FIGURE 4.1 – Géométrie d'un canal d'ouverture sinusoïdale à deux dimensions (cf équation (4.1)).

A partir de ces paramètres, on définit deux nombres sans dimension permettant la caractérisation complète de la géométrie :

$$\epsilon = \frac{2\bar{h}}{L} \quad (4.2)$$

et

$$a = \frac{h'}{2\bar{h}} \quad (4.3)$$

ϵ est le rapport d'aspect de la fracture. a caractérise l'amplitude relative des variations d'ouverture. Lorsque a vaut 0.5, le canal est fermé et les pores sont déconnectés du réseau. Lorsque a vaut 0, le canal est lisse et peut être assimilée à une géométrie de Poiseuille. In situ, les ordres de grandeurs pour ϵ et a peuvent être difficiles à déterminer. Une telle géométrie a pu être envisagée en lien avec 2 configurations : - un milieu fracturé/chenalisé - un milieu poreux homogène.

Dans la première situation, on cherche à représenter une fracture d'ouverture variable. *Zimmerman et al.* (1991) testent l'influence d'une représentation cette géométrie simple est acceptable comme géométrie idéalisée d'une fracture géologique. Toutefois, on sait que la géométrie des fractures géologiques est en réalité plus complexe (*Brown* (1995)). La rugosité des fractures est bien représentée par des parois auto-affine et il y a corrélation entre les parois aux échelles supérieures à une échelle de corrélation. Le champ des ouvertures est donc auto-affine jusqu'à cette échelle. Au delà, il est uniforme. Ce type de rugosité n'est clairement pas assimilable à une géométrie en sinus. Pour autant, une étude récente de *Le Borgne et al.* (2011a) montrent que, malgré la simplicité de la géométrie, les distributions de vitesse d'écoulement et l'influence sur le transport sont analogues à celles obtenues dans milieu poreux plus complexe.

La majorité des méthodes courantes permettant de caractériser des fractures à l'échelle du terrain (par exemple, les essais de pompage, les chocs hydrauliques ou les essais de traçage) ne quantifient que les effets géométriques le long des chemins d'écoulement (et par conséquent, de transport) principaux. On sait que même de faibles variations locales de conductivité hydraulique peuvent induire une chenalisation importante de l'écoulement. Il est donc plus important de caractériser ces chenaux.

S'il est trop compliqué de déterminer une estimation monovaluée des paramètres géométriques in situ, il devient intéressant d'avoir une démarche inverse. On utilise des modèles pour quantifier les impacts sur le transport dans deux conditions extrêmes. A défaut de fournir une seule réponse adaptée, on peut avoir une plage de valeurs et des bornes. Il est alors possible d'identifier d'après les observations si des effets liés à la géométrie sont à considérer ou s'ils sont négligeables.

La seconde situation correspond au milieu poreux. L'écoulement dans un tel milieu peut être vu comme ayant lieu dans des chenaux indépendants d'ouverture variable et alignés dans la direction générale de l'écoulement. Ces chenaux voient leur ouverture varier selon la position dans le milieu. L'exemple d'un milieu constitué de grains empilés est illustré en fig. 4.2. En première approximation, c'est un chenal horizontal dont l'ouverture varie.

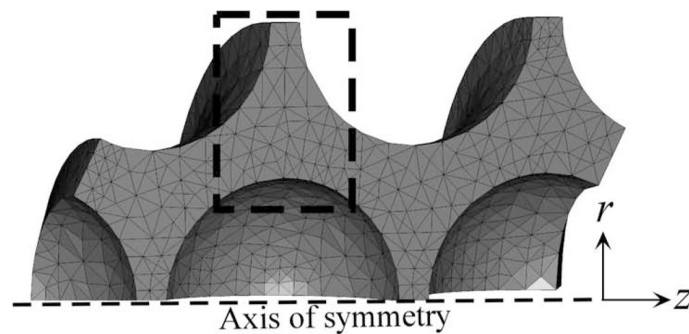


FIGURE 4.2 – Géométrie 3D d'un pore idéalisé dans un milieu poreux, d'après *Chaudhary et al.* (2011).

4.1.2 Autres géométries similaires

Chaudhary et al. (2011) ont effectué des simulations en 3D dans un pore (la géométrie est présentée à la figure 4.2) en résolvant l'équation de Navier-Stokes en imposant une différence de pression Δp entre l'entrée et la sortie. Ils ont testé l'effet des effets densitaires sur la relation entre Δp et le débit. Ils montrent que la loi de Darcy n'est plus valide lorsque le nombre de Reynolds dépasse 1. Plus précisément, au-delà d'une vitesse seuil, la conductivité hydraulique équivalente (calculée pour un pore) devient dépendante de la vitesse d'écoulement. La géométrie de l'écoulement change, des zones de recirculation apparaissent dans l'espace poral, ségrégeant une partie du volume du pore qui ne participe alors plus à l'écoulement principal. En effet, la croissance de la zone de recirculation réduit la taille du chenal d'écoulement, induisant une baisse de la conductivité hydraulique équivalente. Le régime d'écoulement change et suit alors la loi définie par Forchheimer où la relation entre gradient de charge et vitesse de Darcy (Q/A) n'est plus linéaire :

$$\frac{Q}{A} = \left(a + b \frac{Q}{A} \right) \nabla h \quad (4.4)$$

avec a et b deux constantes et Q le débit passant au travers de la section de surface A .

4.2 Ecoulement lent dans un chenal d'ouverture périodique - Solution analytique

Kitanidis and Dykaar (1997) ont cherché une solution analytique au problème de l'écoulement dans un chenal d'ouverture périodique. La géométrie utilisée est 2D et identique à celle décrite dans la section 4.1.1. L'approche est très similaire aux travaux plus anciens de *Hasegawa and Izuchi* (1983). Ils partent de la formulation en fonction de courant de l'équation de Stokes puis utilisent une expansion en série du rapport d'aspect ϵ , défini par l'équation (4.2)). La formulation en fonction de courant $\psi(x, y)$ de l'équation de Stokes s'écrit :

$$\nabla^4 \psi = \frac{\partial^4 \psi}{\partial x^4} + \frac{\partial^4 \psi}{\partial x^2 \partial y^2} + \frac{\partial^4 \psi}{\partial y^4} = 0 \quad (4.5)$$

si la relation entre la fonction de courant $\psi(x, y)$ et le champ de vitesse eulérien est :

$$u_x = \frac{\partial \psi}{\partial y} ; \quad u_y = -\frac{\partial \psi}{\partial x} \quad (4.6)$$

Le développement en série des puissances de ϵ , en ne gardant que les termes jusqu'à l'ordre 4 (avec les termes d'ordre 1 et 3 nuls) est :

$$\psi \simeq \psi_0 + \epsilon^2 \psi_2 + \epsilon^4 \psi_4 + O(\epsilon^6) \quad (4.7)$$

L'équation 4.5 est ensuite adimensionnée. Pour cela, les auteurs utilisent les longueurs caractéristiques $h(x)$ et L ainsi que le débit \bar{Q} (correspondant au débit dans un chenal lisse de même ouverture moyenne). Ainsi, $\tilde{x} = x/L$, $\tilde{y} = y/h(\tilde{x})$ et $\tilde{\psi} = \psi/\bar{Q}$. Chaque terme ψ_i est ensuite obtenu. Ils dépendent des paramètres géométriques, de la vitesse et de la position. L'expression de chaque terme étant particulièrement long, le lecteur peut se référer aux équations (33) à (38) de l'article de *Kitanidis and Dykaar* (1997). Chaque terme est évalué séparément, afin de pouvoir constater l'influence de chacun d'entre eux dans le résultat final.

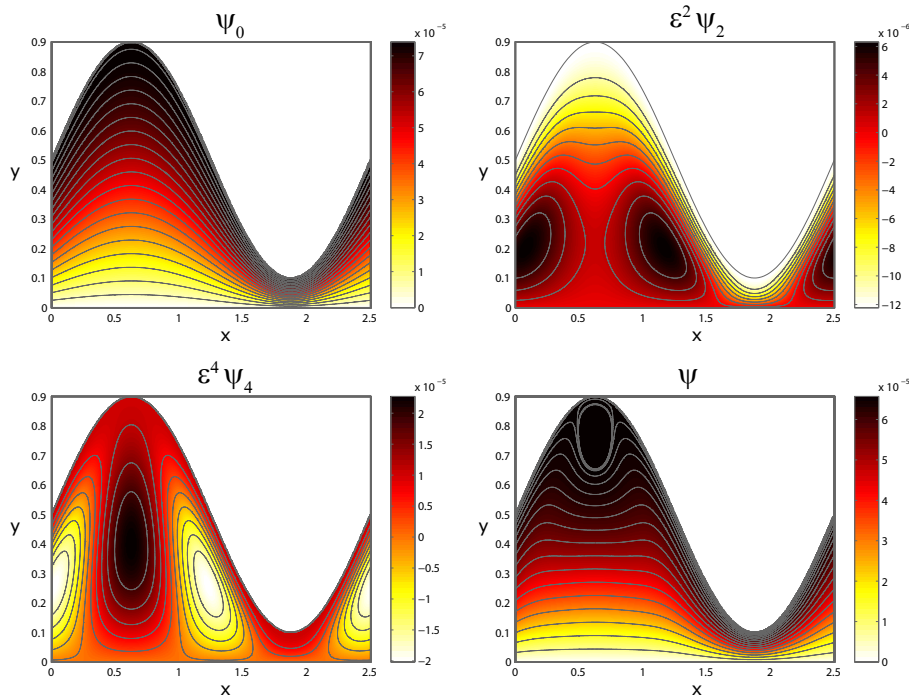


FIGURE 4.3 – Géométrie 3D d'un pore idéalisé dans un milieu poreux, d'après *Chaudhary et al.* (2011).

La limite de validité de la solution analytique n'est pas clairement définie par les auteurs, il est sous-entendu que ϵ doit être petit ($\epsilon \ll 1$). Toutefois, ils montrent un exemple (avec $\epsilon = 0,4$ et $a = 0,4$), dans lequel des zones de recirculation apparaissent. Dans un autre article (*Dykaar and Kitanidis* (1996)), les mêmes auteurs estiment que dans l'apparition des zones de recirculation dans une géométrie identique peuvent être un artéfact de la solution. La figure 4.3 montre les champs pour chacun des termes composant ψ , ainsi que les courbes isovalues. La géométrie choisie est la même que celle décrite par *Kitanidis and Dykaar* (1997) (i.e. $\epsilon = 0,4$ et $a = 0,4$). L'ordre de grandeur de ψ est autour de $5 \cdot 10^{-5}$. Chacun des trois termes composant ψ a des valeurs dans le même ordre de grandeur. Dans ces conditions, aucun terme n'est négligeable.

4.3. Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement

Nous avons calculé l'écoulement dans une géométrie identique (le modèle est décrit en section 4.3.1) et dans des conditions d'écoulement lent. Aucune zone de recirculation n'apparaît. Il faut changer la géométrie et atteindre $\epsilon = 0,8$ et $a = 0,4$ pour avoir une zone de recirculation aussi étendue que celle obtenue par la solution analytique avec $\epsilon = 0,4$ et $a = 0,4$. L'écoulement a également été calculé avec deux autres modèles. Le premier, en éléments finis et basé sur l'équation de Stokes, a été développé par Yves Méheust. Le second utilise une méthode lattice Boltzmann, il a été développé par Jérôme Crassous (Institut de Physique de Rennes). Tous les modèles convergent vers le même champ de vitesse, totalement différent de celui calculé grâce à la solution analytique. Bien qu'une zone de recirculation soit présente, l'écoulement obéit toujours à l'équation de Stokes et est réversible. Les zones de recirculation sont centrées au milieu du pore et symétriques par rapport à la droite de symétrie verticale.

Il s'avère donc que la solution analytique diverge de la réalité lorsque ϵ dépasse approximativement 0,3 si a a lui aussi une valeur assez élevée (supérieure à 0,3).

4.3 Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement

4.3.1 Modèle

L'étude porte sur l'écoulement à des valeurs de nombre de Reynolds supérieures à 1. Toutefois, on n'aborde pas l'écoulement turbulent : les valeurs de Re ne dépassent pas 200. Le terme inertiel de l'équation de Navier-Stokes n'est plus négligeable, mais l'écoulement dans le système reste descriptible de manière déterministe et même stationnaire. Il n'y a aucun couplage entre écoulement et transport, les calculs sont donc effectués séparément.

Écoulement

Les équations de l'écoulement (Navier-Stokes et conservation de la masse) sont résolues par la méthode des éléments finis. Le modèle est composé de deux cellules (i.e. deux pores consécutif).

En entrée de chenal, un flux moyen est imposé sur toute la frontière. Cette condition est similaire à l'ajout d'un chenal lisse en amont de l'entrée du modèle, en entrée duquel serait imposé un profil de vitesse parabolique. En sortie, une valeur unique de pression est imposée sur toute la frontière. De plus, une condition aux limites périodique est appliquée entre la sortie et l'entrée, i.e. les valeurs des deux composantes de la vitesse au niveau de la sortie sont imposées en entrée. Afin de vérifier que la condition de périodicité entre les pores est respecté, le champ de vitesse dans le premier pore est comparé à celui du second pore. Les champs sont parfaitement identiques. Ils sont également identiques au champ

de vitesse calculé par un modèle ne comportant qu'un seul pore.

Le maillage du système est très fin (~ 50000 nœuds) et la tolérance choisie pour le solveur très faible car la résolution du problème ne se heurte à aucune limite des ressources informatiques disponibles.

Les champs des composantes de vitesses sont ensuite exportés pour être utilisés dans le modèle de transport.

Transport

Le transport est résolu par la méthode lagrangienne de marche aléatoire exposée à la section 2.2. La vitesse de la particule est déterminée directement à partir du champ de vitesse exporté depuis le modèle d'écoulement. La discrétisation spatiale du champ exporté étant très fine, aucune interpolation n'est effectuée.

Au temps initial, les particules sont disposées uniformément sur une ligne verticale au niveau du goulot du chenal. Cela revient à choisir pour le champ de concentration une distribution initiale de Dirac :

$$c(x = 0, y) = \delta(x) \quad (4.8)$$

Le pas de temps est constant pour toutes les particules à tous les temps. Il est fixé de telle sorte que la distance de saut maximale (déterminée à partir de la vitesse d'advection maximale, du coefficient de diffusion et du pas de temps) soit inférieure à un centième de la longueur d'un pore. Ainsi, aucune particule ne peut traverser un pore en moins de 100 pas de temps (i.e. 100 sauts). Ce critère appliqué aux conditions d'écoulement étudiées induit que c'est l'advection qui contrôle principalement la valeur du pas de temps.

Toutes les simulations sont effectuées avec 10^6 particules. La simulation dure jusqu'à ce que le coefficient de dispersion longitudinale apparente atteigne une asymptote.

4.3.2 Plages de paramètres étudiées

Géométrie

La première plage de paramètres est liée à la géométrie (tableau 4.1). Les valeurs de a s'échelonnent de 0,1 à 0,4, soit d'une condition de chenal quasiment lisse à un chenal avec des variations d'ouvertures importantes. Les valeurs du rapport d'aspect ϵ s'échelonnent de 0,23 à 0,47, d'une géométrie plus étirée à une géométrie plus écrasée selon l'axe x .

Écoulement

La seconde plage de paramètres concerne l'écoulement. Pour chaque géométrie, le nombre de Reynolds varie de 0,1 à 200. La vitesse moyenne est fixée à 1, le nombre de Reynolds est donc contrôlé en modifiant la masse volumique ρ . Lorsque $Re = 0,1$ les

4.3. Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement

N° de géométrie	L	\bar{h}	h'	ϵ	a
7	2,15	0,5	0,4	0,47	0,4
1	2,15	0,5	0,3	0,47	0,3
2	2,15	0,5	0,2	0,47	0,2
3	2,15	0,5	0,1	0,47	0,1
10	2,15	0,2	0,15	0,19	0,38
11	2,15	0,2	0,1	0,19	0,25
12	2,15	0,2	0,05	0,19	0,13
15	2,15	0,15	0,1	0,14	0,33
16	2,15	0,3	0,1	0,28	0,17
17	2,15	0,4	0,1	0,37	0,13
20	2,15	0,25	0,1	0,23	0,2
21	2,15	0,25	0,15	0,23	0,3
22	2,15	0,25	0,2	0,23	0,4
25	2,15	0,6	0,15	0,56	0,13

TABLE 4.1 – Les différentes géométries étudiées.

effets inertiels sont négligeables. Cela permet de faire le lien avec les études et solutions disponibles pour des conditions d'écoulement lent (*Kitanidis and Dykaar (1997), Bolster et al. (2009b)*). La limite haute de Re est arbitrairement fixée à 200 afin de s'assurer que le terme instationnaire de l'équation de Navier-Stokes soit négligeable. Le véritable seuil de la turbulence est probablement beaucoup plus élevé. Quelques simulations ont été réalisées à $Re = 500$ mais elle n'apportent pas d'informations supplémentaires. Pour les géométries concernées (les plus proches de la géométrie de chenal lisse), si l'on souhaite atteindre des conditions où les zones de recirculation sont pleinement formées, il est probablement nécessaire d'augmenter Re d'un ordre de grandeur.

Transport

La dernière plage de paramètres concerne le transport. La plage de valeurs du nombre de Péclet s'étend de 50 à 500. C'est le coefficient de diffusion moléculaire qui contrôle ce paramètre. De manière générale, le régime est plus advectif que diffusif. Toutefois, à $Pe = 50$, la contribution du terme diffusif reste très importante.

La gamme de valeur des paramètres choisie couvre des situations telles que, par exemple, l'écoulement dans un pore millimétrique dans lequel de l'eau s'écoule à une vitesse moyenne de l'ordre de $5 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$. Un soluté diffusant à $5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ est un peu hors de la plage, bien que l'étude permette probablement d'estimer le transport dans de telles conditions. Le transport de chaleur (avec une diffusivité thermique de $1,43 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$) est lui plus proche des limites basses de valeurs de Pe .

4.3.3 Analyse qualitative

Écoulement

Dans toutes les géométries choisies, l'écoulement à $Re < 1$ ne présente aucune zone de recirculation et l'écoulement est parfaitement réversible. L'analyse qualitative effectuée dans cette section prend principalement pour exemple la géométrie n°7 ($\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$).

A mesure que le nombre de Reynolds augmente (figure 4.4), les lignes de courant ne sont plus symétriques par rapport à la ligne verticale centrale. Une zone de recirculation apparaît dans la concavité en $x = L/2$. Elle grandit d'abord asymétriquement et s'étire vers l'entrée du pore puis à mesure qu'elle remplit toute la concavité, elle tend à redevenir symétrique. La figure 4.5 détaille l'évolution de la position selon x du barycentre de la zone de recirculation pour différentes valeurs de nombre de Reynolds. La zone de recirculation apparaît à $Re \simeq 1$ et grandit asymétriquement jusqu'à $Re \simeq 10$. Ensuite, celle-ci tend à se recentrer. La croissance asymétrique confirme que l'écoulement n'est pas réversible et que les conditions de Stokes ne sont plus valides (les effets inertiels ne sont plus négligeables).

La figure 4.6 détaille la dépendance du volume relatif de la zone de recirculation (calculé par le rapport entre le volume de la zone de recirculation et le volume total du pore) vis-à-vis de Re et a . Lorsque le nombre de Reynolds ou la variation relative d'ouverture augmentent, le volume de la zone de recirculation augmente.

Dans les géométries pour lesquelles a et/ou ε sont faibles, l'écoulement s'approche de l'écoulement dans une géométrie de plaques parallèles. Dans ces conditions, les zones de recirculation n'apparaissent qu'à des valeurs de Re élevées. À $Re = 200$, les zones de recirculation d'une partie des modèles commencent à peine à se développer. Pour ces modèles, le régime avec des zones de recirculation complètement développées n'a pas été examiné.

Transport

La présence des zones de recirculation a un impact important sur le transport. Le soluté advecté sur une ligne de courant proche de la zone de recirculation peut y entrer par diffusion. Il y est ensuite advecté beaucoup plus lentement. Cet écoulement en boucle (dans le sens antihoraire) force le soluté à entrer profondément dans la cavité mais peut aussi lui permettre de se rapprocher ensuite du chenal central plus rapidement que par l'effet de la seule diffusion moléculaire. La figure 4.7 détaille ce processus. Une partie du soluté entre par diffusion et est advectée sub-verticalement sur le côté droit de chaque pore. Ensuite, il suit la géométrie en sinus puis tourne dans la zone de recirculation, tout en s'homogénéisant par diffusion.

Les figures 4.8 et 4.9 détaillent l'évolution de la distribution spatiale du soluté au cours du transport. Deux cas opposés sont étudiés : l'un à $Re = 1$, sans zone de recirculation et

4.3. Effets inertiels dans une canal d'ouverture variant périodiquement

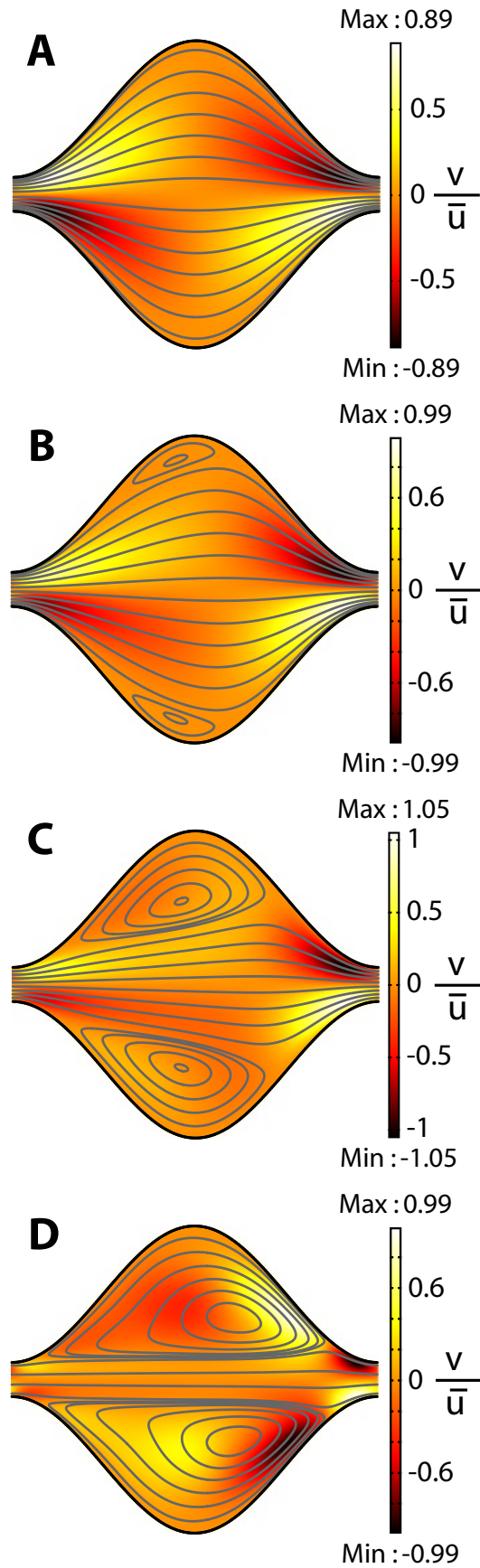


FIGURE 4.4 – Les niveaux de couleurs représentent la composante transverse de la vitesse d'écoulement, v normalisée par la vitesse moyenne d'advection longitudinale (\bar{u}). Le fluide s'écoule de gauche à droite. Les lignes d'écoulement sont représentées en gris. La géométrie est définie par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$. En **A** $Re = 0,1$, en **B** $Re = 10$, en **C** $Re = 20$ et en **D** $Re = 100$.

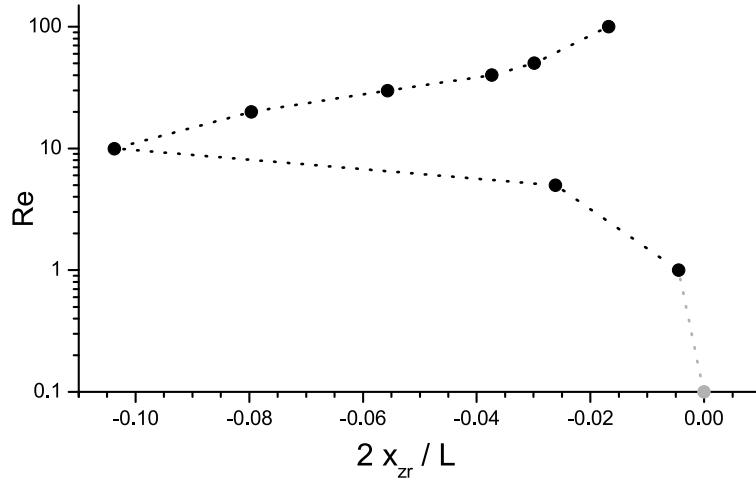


FIGURE 4.5 – Position selon x du barycentre de la zone de recirculation pour une plage de nombre de Reynolds. La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$. $2x_{zr}/L = 0$ au milieu du pore et $2x_{zr}/L = \pm 1$ au niveau des entrée et sortie du pore. En gris, la zone de recirculation n'est pas encore apparue (à $Re = 0,1$).

l'autre à $Re = 100$, lorsque les zones de recirculation occupent une majorité du volume. La vitesse moyenne de l'écoulement est identique, ainsi que le nombre de Péclet ($Pe = 50$). Les observations sont faites à 6 temps adimensionnels τ croissants. τ est défini tel que :

$$\tau = \frac{t \bar{u}}{L} \quad (4.9)$$

avec \bar{u} la vitesse moyenne de l'écoulement dans tout le domaine.

Les figures 4.8 et 4.9 contiennent 3 informations :

- La première est une carte du champ de concentration du soluté. Il permet d'identifier les particularités géométriques du déplacement du soluté.
- La seconde information est le profil longitudinal de masse $M(x, t)$. En d'autres termes, c'est l'intégrale de la concentration selon la verticale en fonction de la position x . Cet observable permet de rendre compte de la répartition longitudinale du soluté et de quantifier, par exemple, quelle est la fraction de soluté située dans un pore. Les effets de piégeage sont alors clairement mis en évidence.
- La dernière information est le profil longitudinal de la concentration moyenne sur chaque verticale ($\bar{C}(x, t)$). Cette concentration est fonction de $M(x, t)$ et de l'ouverture à la position x : $\bar{C}(x, t) = M(x, t)/h(x)$. C'est un indicateur fort de l'homogénéité longitudinale du nuage de soluté. Les oscillations indiquent la différence marquée de concentration entre les zones où l'écoulement est lent et celles où celui-ci est rapide. Lorsque la dilution a été suffisante, le profil spatial de concentration s'adoucit et tend vers une distribution gaussienne. Cela indique que le régime de transport devient fickien et peut être représenté par un modèle de transport 1D.

4.3. Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement

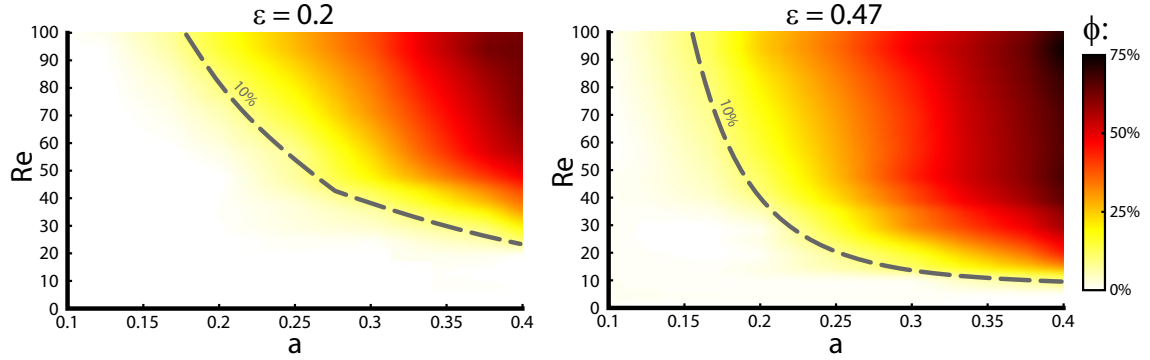


FIGURE 4.6 – Volume relatif de la zone de recirculation ϕ (en niveaux de couleur) en fonction du nombre de Reynolds et de la variation relative d'ouverture a . La ligne en pointillés gris représente la courbe d'isovaleur 10%, en dessous de laquelle le transport est très peu impacté par la présence de la zone de recirculation. Extrait de la figure 3 de l'article en annexe du chapitre.

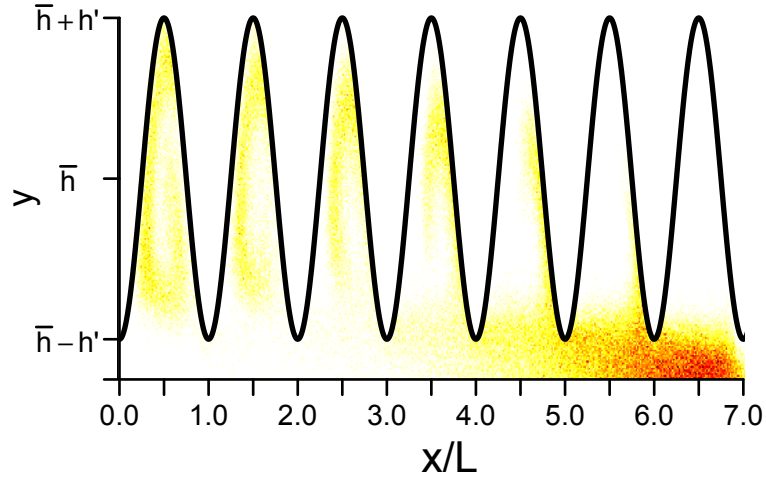


FIGURE 4.7 – Champ de concentration illustrant le chemin emprunté par le soluté pour entrer dans une zone de recirculation très développée (identique à celle visible en figure 4.4D). La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement et le transport par $Re = 100$ et $Pe = 250$.

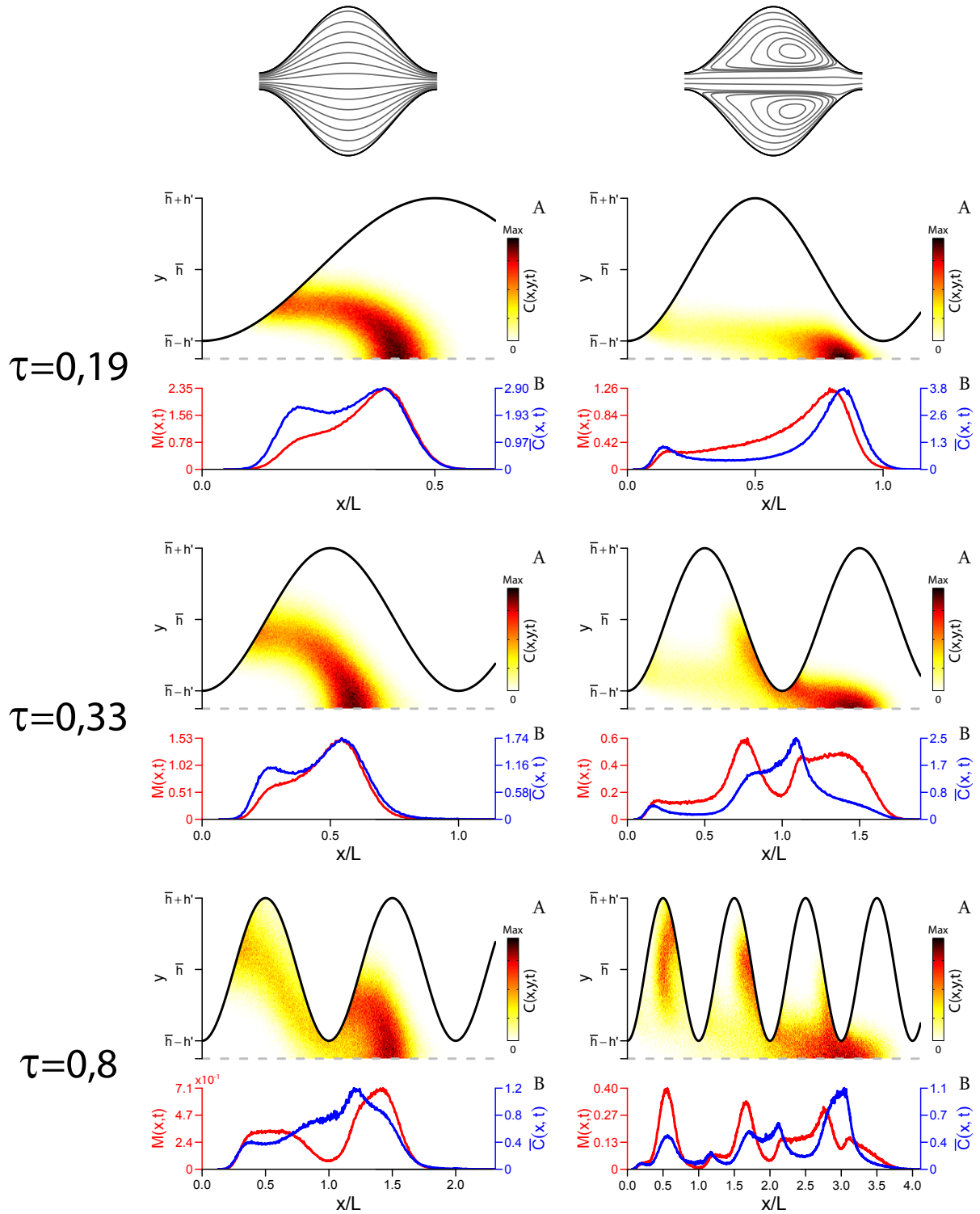


FIGURE 4.8 – Champ de concentration (en niveaux de couleur), du profil de la masse de soluté cumulée verticalement et du profil de concentration moyennée verticalement ($\bar{C}(x, t) = M(x, t)/h(x)$). La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement par $Re = 1$ (colonne gauche) et $Re = 100$ (colonne droite) et le transport par $Pe = 50$.

4.3. Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement

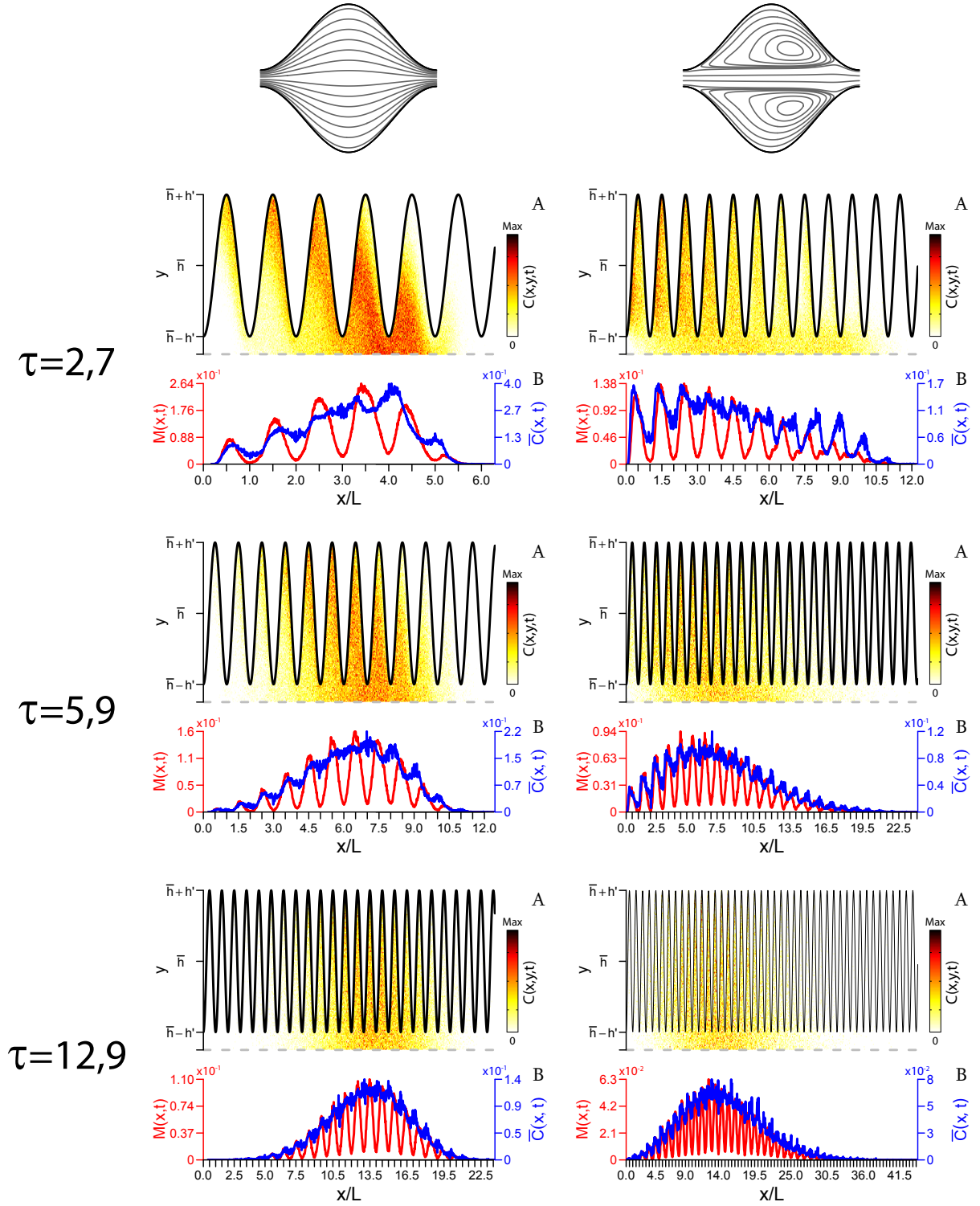


FIGURE 4.9 – Champ de concentration (en niveaux de couleur), du profil de la masse de soluté cumulée verticalement et du profil de concentration moyennée verticalement ($\bar{C}(x,t) = M(x,t)/h(x)$). La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement par $Re = 1$ (colonne gauche) et $Re = 100$ (colonne droite) et le transport par $Pe = 50$.

Au premier temps, la différence de vitesse du centre de masse du nuage entre les deux conditions de Reynolds est très marquée. Le soluté progresse plus rapidement à $Re = 100$ car la vitesse moyenne dans le chenal principal est plus importante (le soluté n'échantillonne pas encore toutes les vitesses du domaine). Dans les deux cas, le profil transverse de vitesse est proche d'un profil parabolique. La déformation en bouclier est nette et la plupart de la masse se situe en tête de nuage.

Aux temps suivants, le soluté passe à travers les premiers goulots. Cela provoque une fragmentation du nuage et l'apparition d'oscillations directement liées à la variation spatiale d'ouverture. Le piégeage par les zones de recirculation à $Re = 100$ devient marqué. Le soluté piégé dans le premier pore y restera plus longtemps qu'à $Re = 1$. La partie du soluté advecté dans le chenal principal se disperse plus rapidement à $Re = 100$ car le cisaillement y est fort sur une distance de transport plus importante.

Aux temps longs, les deux profils de concentration tendent vers une distribution gaussienne. Celle-ci est centrée sur la position selon x avançant à la vitesse moyenne \bar{u} , i.e. La position normalisée x/L du centre de masse tend vers τ . Le transport atteint un régime fickien et peut être représenté à une échelle supérieure à l'échelle microscopique par l'ADE en 1D. Toutefois, le coefficient de dispersion apparent est dépendent de la géométrie d'écoulement.

La figure 4.10 montre l'évolution temporelle de la masse relative présente dans les zones de recirculation. Aux temps courts, celle-ci oscille légèrement lorsque le nuage passe au niveau d'un goulot (où le soluté ne peut diffuser dans une zone de recirculation). Aux temps longs, la masse relative piégée dans les zones de recirculation atteint une valeur asymptotique. Dès lors, le bilan de masse entrant et sortant dans les zones de recirculation s'équilibre. Aux temps asymptotiques, le champ de concentration tend à être uniforme dans la direction transverse à l'écoulement et le soluté expérimente statistiquement tout le champ de vitesse. Comme observé dans la figure 4.10, la masse relative piégée est alors égale au volume relatif occupé par la zone de recirculation (73% dans ces conditions).

La figure 4.10A détaille l'évolution de la masse relative piégée dans les zones de recirculation en fonction du numéro $n_{Z.R.}$ du pore pour différents temps τ . La figure 4.10B contient les mêmes informations mais sous la forme de l'évolution de la masse relative piégée en fonction du temps τ pour différents numéros $n_{Z.R.}$ de pore. On observe que c'est le premier pore qui stocke la masse maximale de soluté la plus importante. En effet, au fur et à mesure que le soluté se déplace, les concentrations du nuage dans le chenal principal diminuent, induisant des gradients de concentration plus faibles et donc un flux diffusif du chenal principal vers les zones de recirculation moindres. On observe également que la distribution longitudinale de la masse de soluté piégé tend vers une distribution gaussienne, de manière analogue à la distribution longitudinale de la masse totale.

Dans les zones de recirculation des premiers pores, le soluté entre durant un temps très court (le nuage est encore peu dispersé). Ensuite, la valeur de la masse relative piégée

4.3. Effets inertiels dans une canal d'ouverture variant périodiquement

décroit exponentiellement. Le soluté entre dans les zones de recirculation des pores plus éloignés beaucoup plus lentement (le gradient de concentration, et donc le flux diffusif, est plus faible) et pendant un temps plus long (la dispersion longitudinale du nuage de soluté est alors plus importante).

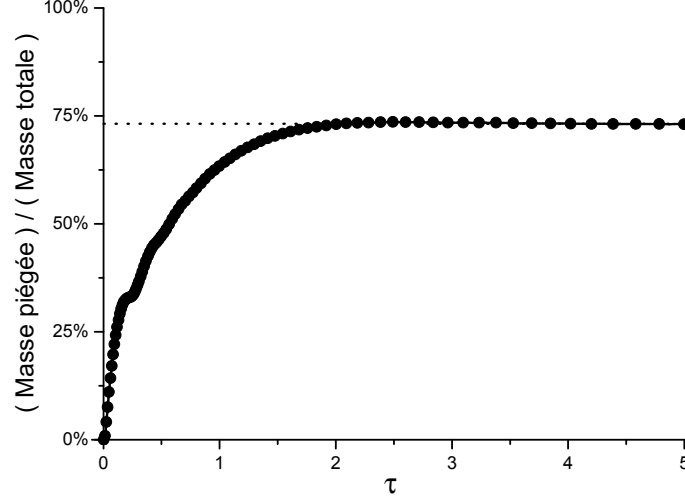


FIGURE 4.10 – Evolution temporelle de la masse de soluté piégée dans les zones de recirculation normalisée par la masse totale. La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement et le transport par $Re = 100$ et $Pe = 250$.

4.3.4 Analyse quantitative

L'évolution temporelle du coefficient de dispersion apparente est montrée dans la figure 8 de l'article en annexe. Aux temps courts, on observe des oscillations. Celles-ci proviennent de l'accélération d'une part du soluté dans le goulot alors que le reste du nuage est toujours dans le pore à une vitesse plus faible. Le coefficient de dispersion tend ensuite vers une valeur asymptotique, D_a^∞ . La figure 4.12A montre l'évolution de cette valeur asymptotique en fonction du nombre de Reynolds pour plusieurs valeurs de Pe . On remarque que, pour chaque géométrie, il est possible de rassembler les courbes ensemble en appliquant un coefficient de mise à l'échelle κ (voir figure 4.12B). On note une relation entre κ et Pe :

$$\kappa = \alpha Pe^\beta \quad (4.10)$$

Pour une géométrie donnée, les courbes ainsi rassemblées sont alors uniquement fonction du nombre de Reynolds. Cette relation ($f(Re)$) n'a pas été caractérisée finement car pour une partie des géométries étudiées, le plateau aux valeurs de Re élevées n'est pas atteint (à cause de la limitation de l'étude à une valeur du nombre de Reynolds maximale : pour $Re = 200$).

On peut donc écrire l'expression du coefficient de dispersion asymptotique ainsi :

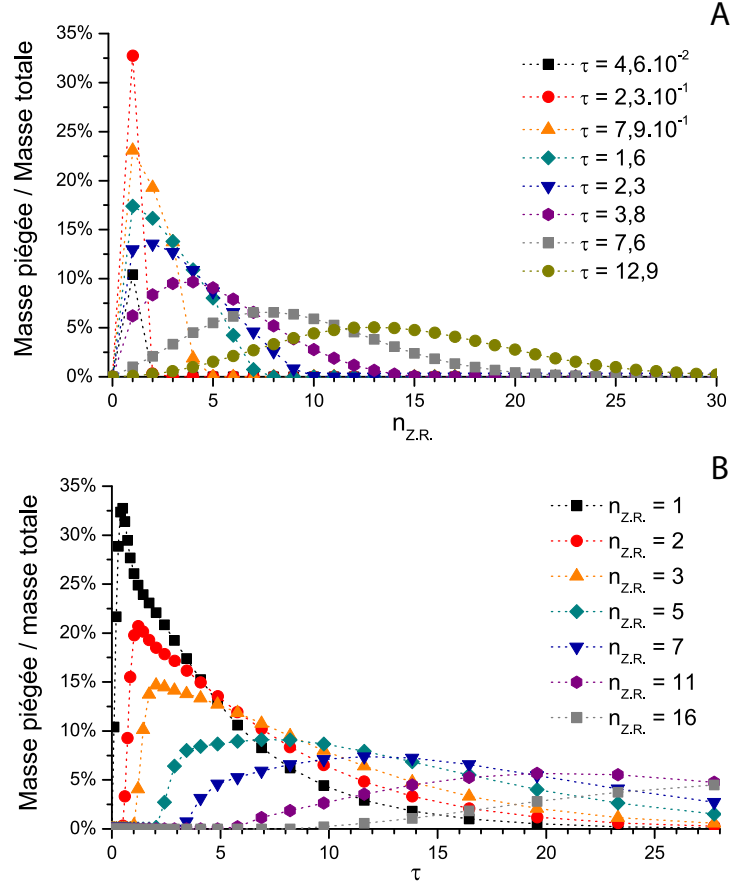


FIGURE 4.11 – (A) Evolution de la masse relative piégée dans les zones de recirculation en fonction du numéro du pore $n_{Z.R.}$ pour différents temps τ . (B) Evolution de la masse relative piégée dans les zones de recirculation en fonction du temps τ pour plusieurs pores de numéro $n_{Z.R.}$. La relation entre la plage de position $x_{Z.R.}$ du pore et son numéro $n_{Z.R.}$ est : $L(n_{Z.R.} - 1) \geq x_{Z.R.} \geq L n_{Z.R.}$. La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement et le transport par $Re = 100$ et $Pe = 250$.

4.3. Effets inertiels dans une chenal d'ouverture variant périodiquement

$$D_a^\infty(Re, Pe) = D_m \left[1 + \frac{2}{105} \left(\alpha Pe^{\beta+2} \right) f(Re) \right] \quad (4.11)$$

Cette relation est à comparer à la relation obtenue par Taylor et Aris :

$$D_{T.A.} = D_m \left[1 + \frac{2}{105} Pe^2 \right] \quad (4.12)$$

Les effets densitaires sont pris en compte par la modification de la puissance appliquée à Pe (par l'ajout de β), l'application d'un facteur α et la prise en compte de la dépendance vis-à-vis du nombre de Reynolds ($f(Re)$). L'article en annexe fournit de plus amples détails.

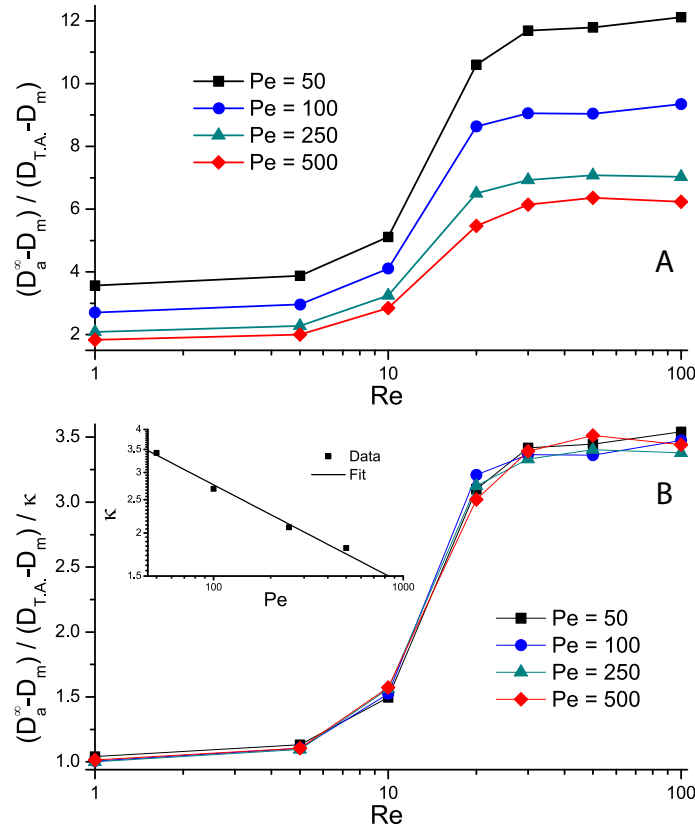


FIGURE 4.12 – Coefficient de dispersion asymptotique normalisé en fonction de Re pour plusieurs valeurs de Pe (A). En (B) les mêmes courbes sont rassemblées en appliquant à chacune un coefficient de proportionnalité κ . L'insert dans (B) montre la relation entre κ et Pe . Les paramètres de la géométrie sont $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$.

4.3.5 Modèle conceptuel équivalent à nombre de Reynolds élevé

Lorsque le nombre de Reynolds est élevé, les zones de recirculation tendent à remplir une majorité de l'espace du pore (jusqu'à 75% dans certaines des géométries étudiées). Lorsque ce régime est atteint, la plupart de l'écoulement s'effectue dans un chenal central dont la hauteur varie peu. La figure 4.13 illustre le champ de vitesse longitudinale dans

une telle configuration. La coupe verticale au milieu du pore permet de se rendre compte que le profil de vitesse s'approche du profil parabolique d'un chenal lisse.

En conséquence, un modèle à double milieu pourrait être à même de fournir une représentation approchée des processus :

- Le premier milieu serait un chenal 1D dans lequel serait résolue l'ADE. Le coefficient de dispersion utilisé est celui de Taylor-Aris calculé pour une ouverture $\bar{h} - h'$. La vitesse moyenne serait $\bar{u}_{\text{goulot}} = \bar{u} \bar{h} / (\bar{h} - h')$.
- Le second milieu serait un milieu homogène où le soluté ne peut entrer que par diffusion. Toutefois, comme on l'a vu dans la section 4.3.3, la diffusion n'est pas le seul processus ayant lieu dans les zones de recirculation. Le soluté continue d'être advecté, bien que lentement (dans le cas de la figure 4.13, il n'y a qu'un ordre de grandeur entre la vitesse maximale dans la zone de recirculation et celle dans le chenal principal). Ce point pourrait compromettre la représentation équivalente.

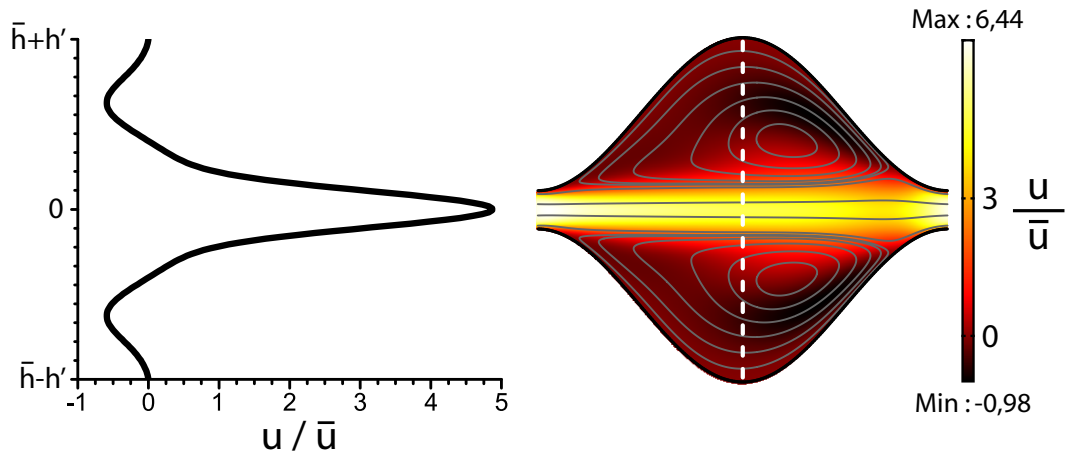


FIGURE 4.13 – A gauche : profil vertical de vitesse longitudinale au niveau des pointillés blancs. A droite : champ de la composante longitudinale de la vitesse d'écoulement en niveaux de couleur et lignes d'écoulement en gris. La géométrie est définie par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$.

4.4 Conclusion

Nous avons étudié numériquement l'impact des effets inertiels sur l'écoulement et le transport dans des chenaux d'ouverture variable (périodique). Nous avons cherché les conditions nécessaires à l'apparition de zones de recirculation et caractérisé leur évolution lors de leur croissance en fonction des paramètres d'écoulement et de géométrie. De manière générale, les zones de recirculation grandissent lorsque le nombre de Reynolds, le rapport d'aspect du pore et l'amplitude de la variation d'ouverture augmentent. L'écoulement reste toutefois laminaire, mais il n'est plus réversible et ne respecte plus les conditions de l'écoulement de Stokes. Dans certaines conditions, la zone de recirculation

occupe près de 75% du volume du chenal.

Après un temps caractéristique suffisamment long, le coefficient de dispersion apparent longitudinal atteint un régime asymptotique. Ce comportement est analogue à celui étudié par Taylor. Toutefois, la valeur du coefficient de dispersion asymptotique est différente du coefficient de dispersion de Taylor-Aris (obtenu pour un chenal constitué de deux plaques parallèles). Nous proposons une expression (équation (4.13)) qui généralise celle de Taylor et Aris (équation (4.14)) :

$$D_a^\infty(Pe, Re) = D_m \left[1 + \frac{2}{105} \left(\alpha Pe^{\beta+2} \right) f(Re) \right] \quad (4.13)$$

$$D_{T.A.} = D_m \left[1 + \frac{2}{105} Pe^2 \right] \quad (4.14)$$

Les deux équations ont une forme générale très similaire. Le coefficient de dispersion D_a^∞ devient dépendant du nombre de Reynolds par le facteur $f(Re)$ qui est une fonction de Re seulement. La puissance appliquée au nombre de Péclet est modifiée par l'ajout de β et le facteur multiplicatif $2/105$ est corrigé d'un facteur α . On notera que β est toujours inférieur à 0 et que les paramètres α et β sont caractérisés par la seule géométrie.

Annexe : « The impact of inertial effects on solute dispersion in a channel with periodically-varying aperture », Article soumis au journal *Physics of Fluids*.

The impact of inertial effects on solute dispersion in a channel with periodically-varying aperture

J. Bouquain^a, Y. Méheust^a, D. Bolster^b, P. Davy^a

(a) *Geosciences Rennes (UMR CNRS 6118), Université Rennes 1,
Campus de Beaulieu, 35042 Rennes Cedex, France and*

(b) *Department of Civil Engineering and Geological Sciences,
University of Notre Dame, IN, USA*

Abstract

We investigate solute transport in channels with a periodically varying aperture, when the flow is still laminar but sufficiently fast for inertial effects to be non-negligible. The flow field is computed for a two-dimensional setup using a finite element analysis, while transport is modeled using a random walk particle tracking method. Recirculation zones are observed when the aspect ratio of the unit cell and the relative aperture fluctuations are sufficiently large ; under non-Stokes flow conditions, the flow is non-reversible, which is clearly noticeable by the horizontal asymmetry in the recirculation zones. After characterizing the size and position of the recirculation zones as a function of the geometry and Reynolds number, we investigate the corresponding behavior of the longitudinal apparent dispersion coefficient. We characterize its dependence on the molecular diffusion coefficient D_m , the Péclet number, the Reynolds number, and the geometry. The proposed relation is a generalization of the well-known Taylor-Aris relationship relating the longitudinal dispersion coefficient to D_m and the Péclet number for a channel of constant aperture at sufficiently low Reynolds number. Inertial effects impact the exponent of the Péclet number in this relationship; the exponent is controlled by the relative amplitude of aperture fluctuations. For the range of parameters investigated, the measured dispersion coefficient always exceeds that corresponding to the parallel plate geometry under Stokes conditions; in other words, boundary fluctuations always result in increased dispersion. The transient approach to the asymptotic regime is also studied and characterized quantitatively. We show that the measured characteristic time to attain asymptotic conditions is controlled by two competing effects: (i) the trapping of particles in the near-immobile zone and, (ii) the enhanced mixing in the central zone due to the thinning of the zone where most of the flow takes place.

I. INTRODUCTION

Ever since GI Taylor's seminal work [41] where he demonstrated that the transport of a solute in an axisymmetrical shear flow was effectively reduced to a one-dimensional dispersion process by using a longitudinal effective dispersion coefficient, the concept of effective dispersion has proven enormously useful and popular across a wide range of fields and applications. This includes, but is not limited to micro fluidic systems [35, 42], nutrient transport in bloodflow [23, 45], single and multiphase transport in porous media [4, 5, 8, 20, 31, 32, 39] and transport in groundwater systems [15, 16, 22, 30].

The basic idea behind Taylor dispersion is simple. At "asymptotic" times, which are times when the solute has sampled by diffusion the full variability of the flow velocities, gradients of solute in the direction transverse to the flow direction can be considered negligible. At these times spreading of the plume occurs only in the longitudinal direction and can be described by a one-dimensional advection-diffusion model. The corresponding diffusive term features an effective dispersion coefficient that contains the longitudinal molecular diffusion but results mostly from the interaction between the transverse heterogeneity of the velocity field and the molecular diffusion in the transverse direction. The results of the earliest works, which addressed the axisymmetrical (cylindrical tube) geometry [1, 41], were later generalized to other geometries including the parallel plate [3, 43], and the principles hold for more complex systems. At times earlier than these "asymptotic" times, the behaviour is more complicated as the rate of spreading of the plume and mixing are not the same [16, 46]. A variety of works exist studying these preasymptotic times for the cylindrical- or parallel plate- configurations [6, 26, 33], and also when density-driven coupling of flow and transport is present [7]. However, all these prior studies address advecting flows with no significant inertial effects (Stokes flow).

In many applications of practical interest the relevant channels do not have constant aperture. However, using slightly more complicated approaches the notion of Taylor dispersion can still readily be applied using what has been coined generalized Taylor dispersion theory, which is based on the method of local moments [8]. Using such approaches, many authors have shown that deviation from parallel smooth boundaries can significantly alter behaviour [21], leading to relative increases [25, 29, 40, 44] or even decreases [5, 18, 38] in the effective dispersion.

In most studies for flow through porous media it is reasonable to assume small Reynolds numbers $Re < o(1)$. Thus it is common practice and reasonable to assume that flow is governed by the Stokes equations where inertial effects are neglected. While this is very often a reasonable assumption [19], a variety of practical situations exist where the Reynolds number can become of order unity and larger such that inertial effects are no longer negligible. Practical examples include flow through fractures with large aperture [10, 11, 13, 36] and flows where the viscosity can be small such as carbon sequestration where the viscosity of supercritical CO_2 can be one or two orders of magnitude smaller than that of water [24].

Increased inertial effects play an interesting role on the structure of the flow [28, 37]. In particular they lead to the presence of recirculation zones [36], which represent immobile regions that can have a significant impact on effective solute transport and in particular on

the asymptotic dispersion, both for reactive [19] and inert solute transport [5], depending on typical mass transfer time scales [12, 17, 27].

In this work, considering an idealised pore geometry, we focus on flow regimes at Reynolds numbers larger than 1, where inertial effects become significant. However, we do not consider situations where the Reynolds number becomes sufficiently large for the flow to become turbulent. In particular we consider the evolution in size of the recirculation zones with increasing Reynolds number and investigate what effect this has on the pre-asymptotic transport and ultimately on asymptotic dispersion. We compute the 2D flow field using a finite-element model and the solute transport based on a random walk method. We describe the geometry, the mathematical basis and the numerical implementation of our simulations in section 2. The results are presented in section 3 and discussed in section 4.

II. METHODS

A. Geometry definition

We define a two dimensional geometry with a sinusoidal wall boundary, as described in refs. [5, 30].

$$h(x) = \bar{h} - h' \cos\left(\frac{2\pi x}{L}\right) \quad (1)$$

where h is the half-aperture at horizontal position x , \bar{h} is the average half-aperture, h' is the maximum amplitude of the aperture fluctuation and L the length of the “unit” cell (see Fig. 1). The fluid flows from left to right.

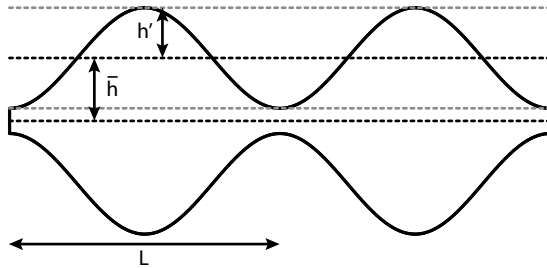


Figure 1. Geometry of two consecutive unit cells. \bar{h} is the average half-aperture, h' define the aperture fluctuation and L is the length of the unit cell, or wavelength of the sinusoidally-varying channel.

This geometry can be fully characterized by two dimensionless numbers, namely the aspect ratio of the cell ϵ

$$\epsilon = \frac{2\bar{h}}{L} \quad (2)$$

and the relative amplitude of the aperture fluctuations, a :

$$a = \frac{h'}{2\bar{h}} \quad (3)$$

When a equals its maximum value of $1/2$, the channel is closed and pores are disconnected from the network. When a goes to 0, the channel is smooth and goes to the parallel plate geometry.

While this is obviously a simplified model for a real porous medium, Edwards et al. [20] illustrated that it is likely relevant for representing flow and transport in a cylindrically packed porous medium. It has also sometimes been considered as an idealized model for the geometry of a geological fracture [47], although realistic fracture geometries are known to be even more complicated [9]. A recent study demonstrated that many of the qualitative and quantitative features regarding velocity distributions and influence on solute transport of a more complex porous medium are well represented by such a simple setup [34].

The channel half mean aperture \bar{h} , the mean fluid velocity \bar{u} , defined in two dimensions as the ratio of the constant volumetric flow rate to \bar{h} , and the fluid cinematic viscosity ν define the Reynolds number :

$$Re = \frac{2\bar{h}\bar{u}}{\nu} \quad (4)$$

On a typical pore scale, Reynolds numbers are usually small ([2, 30]), of the order of 10^{-4} – 10^{-1} . For such Reynolds numbers, flow is described by the linear Stokes equation. For a slowly varying boundary, i.e., $\epsilon \ll 1$ and small Reynolds number, Kitanidis and Dykaar [30] derived an analytical solution for the flow velocity using a perturbation expansion in ϵ . However at larger Reynolds numbers when inertial terms cannot be neglected, this semi-analytical approach is no longer valid; to the best of our knowledge no obvious analytical approach exists to solving the nonlinear governing Navier-Stokes equations.

B. Basic equations and numerical simulations

1. Flow

Direct numerical simulations of the steady state flow through the geometry described in the previous section were conducted. The flow is assumed to be incompressible. The conservation of mass therefore reads as:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (5)$$

where \mathbf{u} is the velocity field. The conservation of momentum equation is :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = \rho \mathbf{g} - \nabla p + \eta \nabla^2 \mathbf{u} \quad (6)$$

where ρ is the density of the fluid, \mathbf{g} is the gravity field and η is the dynamic viscosity of the fluid.

The system of joint Eqs. equation (5) and equation (6) are solved using a finite element method. The finite element numerical simulation is conducted with the commercially available software (Comsol Multiphysics [14]), in two dimensions and using Lagrange-quadratic elements. The flow is solved on a mesh made of triangular elements (up to 100,000) with a maximum side length fixed to $L/280$. At larger scales, there is no anisotropy induced by the meshing. The solver computes the transient flow iteratively until a stationary solution has been obtained.

The left and right in- and outflow boundaries are treated as periodic, that is, the flow velocity \mathbf{u} across the cross-section is the same at the inlet and at the outlet. A mean flow is imposed on the inlet boundary. The outlet is set to a constant pressure, which allows the solver to adjust the pressure in the geometry to suit the globally imposed volumetric flow. The details of the numerical method for flow, applied to a different, but similar, geometry, is described in detail in ref. [7].

2. Transport

We neglect any possible density-driven retroaction of transport on flow, i.e. we assume that the presence of the solute plays a negligible role in changing the density of the fluid. The transport problem is therefore treated once the flow field has been solved for. It is solved numerically using Lagrangian particle tracking random walk simulations based on the Langevin equation. This approach is chosen for two reasons: (i) because of the periodic domain considered here, one does not have to *a priori* impose the size of the domain and one can allow transport to occur over as large a distance/computational domain as desired and (ii) because Lagrangian methods do not suffer from problems associated with numerical dispersion in the same way that Eulerian methods can; as we are trying to quantify a dispersive effect we wish to minimize uncertainties on the results as much as possible. The initial condition that we choose is a line uniformly distributed across the width of the channel, i.e.

$$c(x, z) = \delta(x) \quad (7)$$

In discrete time, the equation of motion of the n th solute particle, located at position \mathbf{x}' at initial time, is given by the Langevin equation:

$$x^{(n)}(t + \Delta t | \mathbf{x}') = y^{(n)}(t | \mathbf{x}') + u^{(n)}(t | \mathbf{x}')\Delta t + \eta_1 \sqrt{2D_m\Delta t} \quad (8)$$

$$y^{(n)}(t + \Delta t | \mathbf{x}') = y^{(n)}(t | \mathbf{x}') + v^{(n)}(t | \mathbf{x}')\Delta t + \eta_2 \sqrt{2D_m\Delta t} \quad (9)$$

where $\mathbf{x}^{(n)} = (x^{(n)}, y^{(n)})$ denotes the position of the particle and $\mathbf{v}^{(n)} = (u^{(n)}, v^{(n)})$ its velocity. The η_i ($i = 1, \dots, d$) are independently distributed Gaussian random variables with zero mean and unit variance. This Langevin equation is equivalent to the Fokker-Planck equation that is identical to the advection-diffusion equation, which describes the time evolution of the solute concentration field inside the system. Solid boundaries are modeled as elastic reflection boundaries in order to account for their impermeability.

The mean half aperture \bar{h} , the mean fluid velocity \bar{u} and molecular diffusion coefficient D_m define the Péclet number :

$$Pe = \frac{2\bar{h}\bar{u}}{D_m} \quad (10)$$

The average position of the solute plume is that of its center of mass :

$$x_G(t) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N [x^{(n)}(t)] \quad (11)$$

The velocity of the center of mass is the mean horizontal velocity of the solute plume. We normalize it by the mean advection velocity :

$$\tilde{u}_G(t) = \frac{1}{\bar{u}} \frac{dx_G}{dt} \quad (12)$$

The cross-sectionally integrated mass is

$$M(x, t) = \int_{-h(x)}^{h(x)} C(x, y, t) dy \quad (13)$$

resulting in a mean cross-sectional concentration $\bar{C}(x, t)$ with the form

$$\bar{C}(x, t) = \frac{1}{2h(x)} M(x, t) \quad (14)$$

We quantify longitudinal dispersion in this system from calculations of the horizontal spatial moments of the plume as it evolves in time. The i th local moment is given by summation over the i th power of the particle trajectories of all N simulated particles originating from a single \mathbf{x}' ,

$$\mu^{(i)}(t | \mathbf{x}') = \lim_{J \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N [x^{(j)}(t)]^i \quad (15)$$

The global moments are obtained by summation over all initial positions \mathbf{x}' ,

$$m^{(i)}(t) = \lim_{M \rightarrow \infty} \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \mu^{(i)}(t | \mathbf{x}'^{(m)}) \quad (16)$$

The apparent dispersion coefficient is then given by

$$D_a(t) = \frac{1}{2} \frac{d}{dt} [m^{(2)}(t) - m^{(1)}(t)^2] \quad (17)$$

When particles have had sufficient time to sample all the flow lines by diffusion, the asymptotic apparent dispersion coefficient is typically attained . It is defined as

$$D_a^\infty = \lim_{t \rightarrow \infty} D_a(t) \quad (18)$$

The Taylor-Aris dispersion occurring in a channel of uniform aperture is a well-known limit case for the configuration studied here. In this study we wish to compare only

the term induced by the coupling of diffusion and advection processes and remove the diffusion term alone. We do so by subtracting D_m from both our dispersion coefficients and the Taylor-Aris dispersion coefficient $D_{T.A.}$ ([1, 41]), thereby defining a normalized dispersion coefficient as

$$\tilde{D}_a(t) = \frac{D_a(t) - D_m}{D_{T.A.} - D_m} \quad (19)$$

which for the particular asymptotic dispersion coefficient is

$$\tilde{D}_a^\infty = \frac{D_a^\infty - D_m}{D_{T.A.} - D_m} \quad (20)$$

$D_{T.A.}$ is defined for a parallel plate fracture with identical mean aperture and is given by (Wooding [43])

$$D_{T.A.} = D_m + \frac{2}{105} \frac{(\bar{u}\bar{h})^2}{D_m} \quad (21)$$

In terms of Peclet number it can be written as

$$D_{T.A.} = D_m \left[1 + \frac{2}{105} Pe^2 \right] \quad (22)$$

The simulations presented release N particles from each initial position. The line source is represented by distributing them evenly along the cross-section of the channel at horizontal position $x = 0$. For all the time dependent studies, we nondimensionnalized time by τ , a characteristic advection time defined as the time needed for a particle moving at the mean velocity \bar{u} to cross a single unit cell :

$$\tau = \frac{t \bar{u}}{L} \quad (23)$$

Additionally, For convenience, \bar{u} is set to 1 for all the simulations and the total mass injected is equal to 1.

III. RESULTS

In sections III A and III B below we first describe the observed flow and transport, respectively, qualitatively. We then study the longitudinal effective dispersion coefficient quantitatively.

A. Flow phenomenology

The presence of recirculation zones depends on the geometry (ϵ and a) and on the Reynolds number. Examples are given in Fig. 2. At very small Reynolds numbers, Stokes flow conditions are fulfilled and the flow is reversible when changing the direction of time, which results in its geometry being symmetric with respect to the vertical line $x = L/2$, as shown in Fig. 2A. In this figure, no recirculation zones are to be seen: each streamline

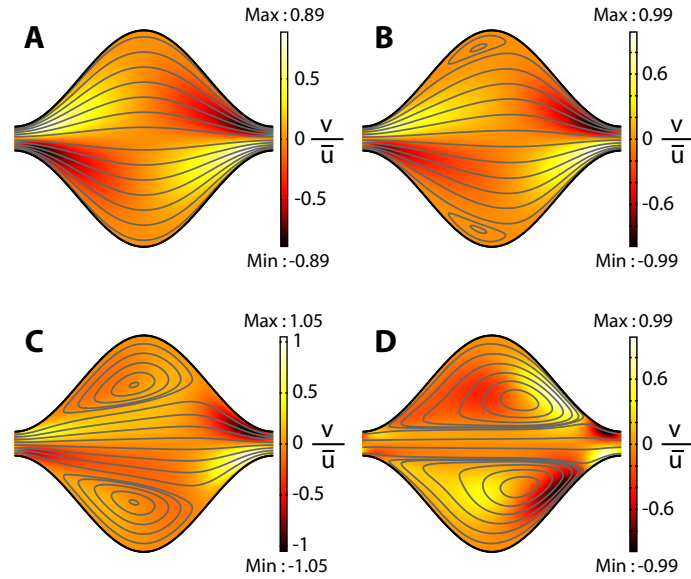


Figure 2. The color maps show the vertical component of the velocity field, v , normalized by the mean horizontal velocity \bar{u} . Flow lines are superimposed. The cell geometry is ($\epsilon = 0.47$, $a = 0.4$), and 4 Reynolds numbers are considered: In A, $Re = 0.1$ and the ratio between the volume of the recirculation zone and the volume of the cell ϕ is 0%; in B, $Re = 10$ and $\phi = 10\%$; in C, $Re = 20$ and $\phi = 47\%$; in D, $Re = 100$ and $\phi = 75\%$. Fluid flows from left to right.

is homothetic to one of the walls (Fig. 2A); note that this homothety between the walls and streamlines is not enforced by the flow equations and thus not always true: when ϵ and a are both sufficiently large, recirculation zones are visible even in Stokes flow conditions[5, 30]. At larger Re values inertial effects become evident and the flow lines and vertical velocity maps become asymmetric with respect to the vertical line $x = L/2$ (Fig. 2B), showing that the flow is no longer reversible. The recirculation zones appear in the widest part of the cell in Fig. 2C, and their size grow monotonically with Re (see Fig. 2C for which $\epsilon = 0.47$, $a = 0.4$ and $Re = 20$). The growth is asymmetric but ultimately leads to a flow shape similar to that seen with a single fracture with perpendicular lateral dead ends such as the geometry studied by Lucas[36].

We define the volume fraction of the recirculation zone ϕ as the ratio of the volume of the recirculation zone to that of the cell, V_{RZ}/V . It provides a measure of what fraction of pore space corresponds to a flow that is bounded in the longitudinal direction, and therefore will not contribute to advecting particles from one unit cell to the next one..

ϕ is a function of the geometry and the Reynolds number (see Fig. 3). Maps of ϕ as a function of the relative aperture fluctuation a and the Reynolds number are shown in the top row of Fig. 3 for two values of the cell aspect ratio ϵ . The isoline $\phi = 10\%$ is chosen as the threshold at which we consider that the presence of these recirculation zones begins to have a significant impact on asymptotic transport (i.e. on the asymptotic dispersion coefficient). Depending on the geometry, the 10% limit can be reached at a quite low Reynolds numbers. For example, for $a = 0.25$, i.e. when the aperture at the x position at which the fracture is the widest is equal to 3 times the aperture in the

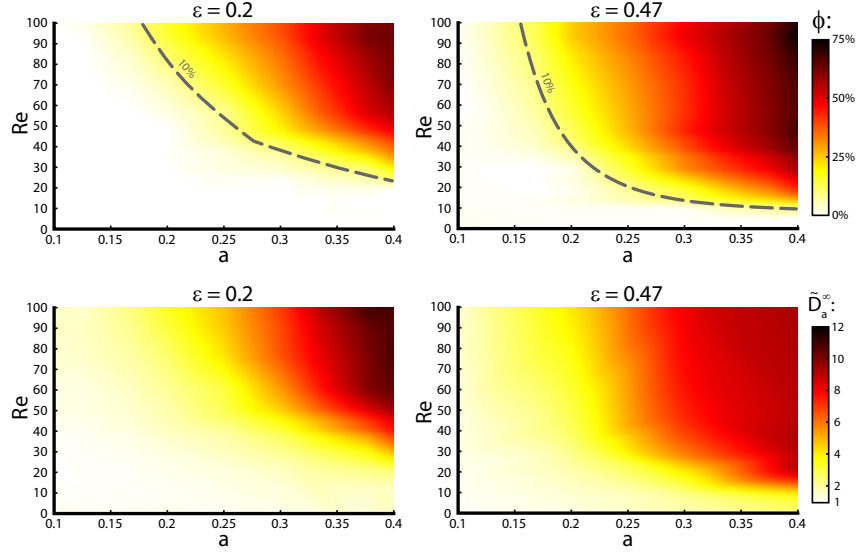


Figure 3. Volume of the recirculation zone (first row) and normalized asymptotic dispersion coefficient (second row) as a function of the Reynolds number and the relative aperture fluctuation a , for two values of the cell aspect ratio ϵ and $Pe = 100$. The dashed line represents the 10% threshold below which the transport is slightly to no impacted by the presence of a recirculation zone. The data are interpolated using a trilinear interpolation.

channel throat, Reynolds number values as low as 20 are sufficient for recirculation zones to significantly impact transport. But we shall see in section III D that for $a = 0.166$ (i.e. the max/min aperture ratio being 2), transport is unaffected by recirculation zones for $Re \lesssim 100$.

B. Transport phenomenology

Fig. 4 shows a representative analysis of the observables for the transport in a case where $Pe = 100$, $Re = 1$, $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$. The flow configuration is very similar to the one shown in Fig. 2A, without any recirculation zone. We expect that once all the particles have experienced all velocities in the domain, the horizontal velocity of the center of mass should converge to the mean flow velocity. This behaviour is confirmed in Fig. 4A. The normalized dispersion coefficient $\tilde{D}_a = D_a/D_{T.A.}$ also tends to an asymptotic value, which is larger than 1. It means that the dispersion coefficient value is larger than the one predicted for the uniform aperture case of identical mean aperture.

The early time oscillations of the dispersion coefficient are directly related to the oscillation of the velocity of the center of mass due to the spatial variability in aperture, flow incompressibility, and imposed constant flow rate. The shape of the time evolution of the velocity is directly related to the geometry parameters (ϵ and a), Reynolds number (Re) and Péclet number (Pe). When a increases, the velocity difference between the widest and thinnest zone becomes larger and the oscillation amplitudes increase. When ϵ increases, the length of the cells is smaller and thus the frequency of the oscillation increases. The effect of an increase of Re alone is a widening of the recirculation zones

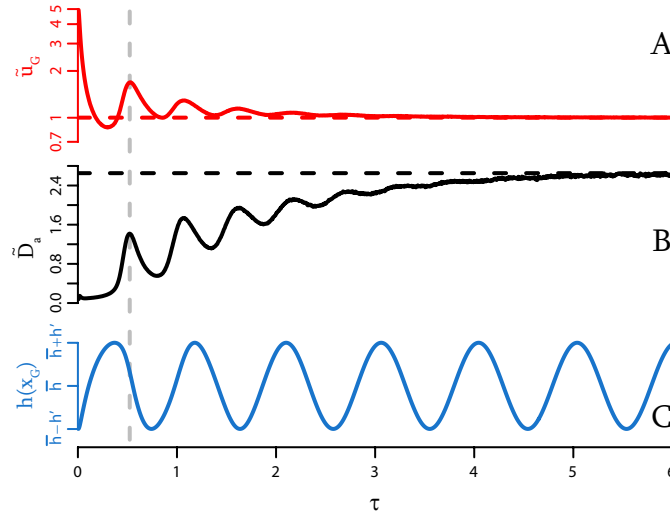


Figure 4. Evolution of (A) the normalized mean horizontal velocity \tilde{u}_G , (B) the normalized dispersion coefficient \tilde{D}_a and (C) the aperture at the position of the center of mass $h(x_G)$ as a function of the reduced time $\tau = t\bar{u}/L$. The geometry is defined by $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$, flow and transport by $Pe = 100$ and $Re = 1$.

such that the longitudinal flow appears similar to the parallel plate case (the oscillation amplitude decreasing dramatically) but with a smaller effective mean aperture. Consequently, the velocity of the plume center of mass also increases as most of the solute is in the *mainstream* (that is outside of the recirculation zone), leading to a higher oscillation frequency. When Pe decreases, the higher diffusion coefficient contributes to reaching the asymptotic regime sooner, which means that the oscillations are dampened more quickly.

The first peak of the dispersion coefficient in Fig. 4 occurs at $\tau \approx 0.5$ (shown with a dashed grey line) and nearly coincides with the first peak of the horizontal velocity. A snapshot of the spatial solute distribution at this moment is shown in Fig. 5. A significative part of the solute mass is in the cell throat where the velocity is at a maximum while the rest of the solute is in a relatively slow zone. In this configuration, the plume is highly stretched, leading to a large dispersion coefficient value.

Figures 6 and 7 provide a comparison of the spatial distribution of the concentration at a time $\tau \approx 1.25$ for two opposite cases; a highly diffusive one with smaller Péclet number ($Pe = 50$) (Fig. 6) and another highly advective one with large Péclet number ($Pe = 500$) (Fig. 7). The Reynolds number is high in both cases ($Re = 200$), with fully developed recirculation zones, as seen in Fig. 2D. Note that the maximum concentration values are different and so are the color scales. In the first cell, vertically-averaged solute concentration are very similar in both cases. In Fig. 7, solute barely enters the recirculation zones and most of the mass is in the center of the cells, moving quickly. Particles can jump by diffusion on to a line on the edge of the recirculation zone and then enter more deeply into the zone by advection. As such, they are observed to be advected deeper into the recirculation zone by the right side of the unit cell. As the diffusion coefficient is small while the probability to enter the recirculation zone is low, the probability to exit it again is also low. On the contrary, in Fig. 6 a significant amount of the total mass has been

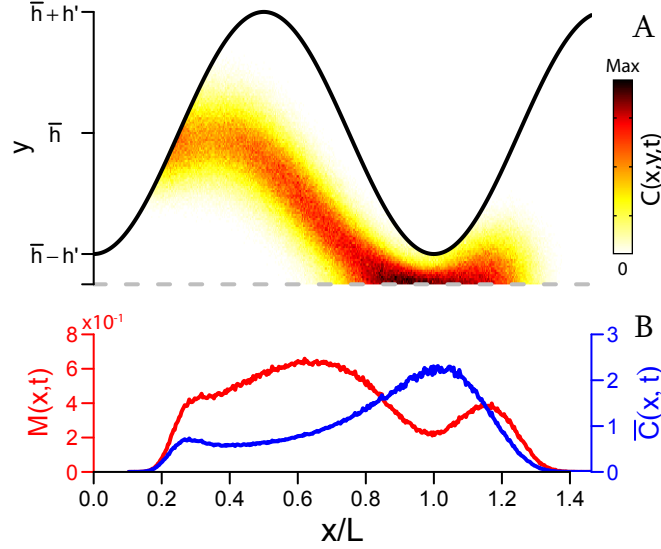


Figure 5. Snapshot of (A) the concentration field and (B) vertically-summed mass $\bar{M}(x, t)$ and vertically-averaged concentration $\bar{C}(x, t)$ at the first peak time in the longitudinal dispersion coefficient evolution shown by the gray dashed line in Fig. 4 (i.e. at $\tau \approx 0.5$). The geometry is defined by $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$, flow and transport by $Pe = 100$ and $Re = 1$.

able to enter the recirculation by diffusion. In Fig. 6B, the particles are nearly equally distributed in the three first cells and begin to enter the fourth cell. The concentration values are mostly in the range $[0.3, 1]$ and three throat zones are not empty. In Fig. 7B, most of the particles are at the front of the plume, even if a significant amount is trapped in the recirculation zones. The concentration is already very low in the first throats but high at the front of the plume. The concentration values are mostly in the range $[0, 2]$.

C. Time evolution of the apparent dispersion coefficient

As shown in Fig. 4, the early time oscillations of the dispersion coefficient and velocity of the center of mass v_m seem to be in phase. It turns out that, once normalized by a proper v_m^λ law, the longitudinal dispersion data exhibits next to no fluctuations reminiscent of the sinusoidal boundary conditions (see inset in Fig. 8); additionally we note that it is well described by a stretched exponential behavior. In other words, the D_a data has excellent fitted a law of the form (Fig. 8):

$$D_a(\tau) = D_a^\infty \left[1 - \exp \left(- \left(\frac{\tau}{\tau_c} \right)^\gamma \right) \right] v_m^\lambda \quad (24)$$

where D_a^∞ is the asymptotic dispersion coefficient, τ_c a characteristic time, the velocity of the center of mass, and γ is the exponent inside the stretched exponential. The fitting parameters D_a^∞ , τ_c , γ and λ correspond to distinct geometric properties of the curve, and are therefore obtained with only a small degree of uncertainty.

For most of the simulations, the dispersion coefficient oscillates in time before reaching the asymptotic value. These oscillations are directly related to the shape of the geometry

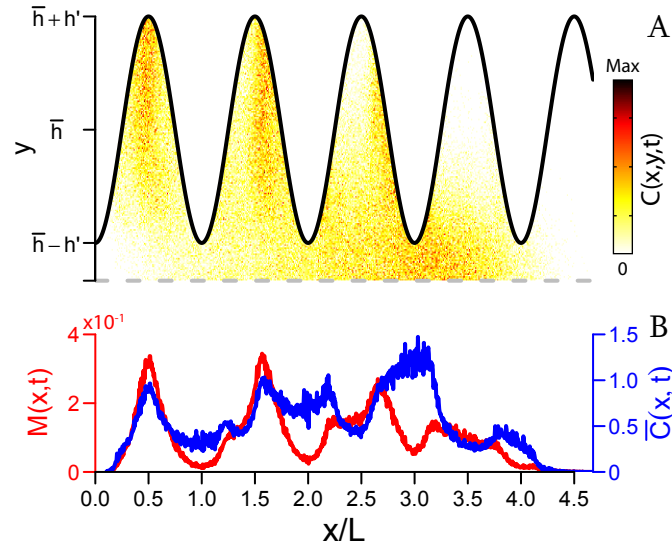


Figure 6. Snapshot of (A) the concentration field and (B) vertically-summed mass $\bar{M}(x,t)$ and vertically-averaged concentration $\bar{C}(x,t)$ at in a geometry with $\epsilon = 0.19$ and $a = 0.38$ at time $\tau \approx 1.25$. The configuration is highly diffusive ($Pe = 50$, $Re = 200$).

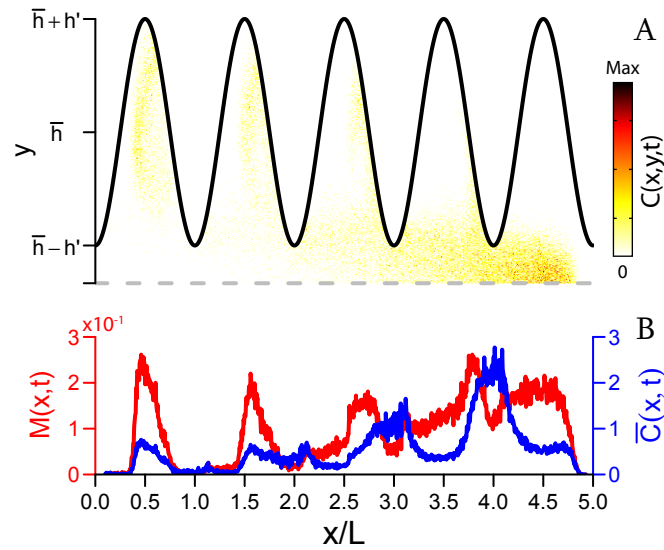


Figure 7. Snapshot of (A) the concentration field and (B) vertically-summed mass and vertically-averaged density in a geometry with $\epsilon = 0.19$ and $a = 0.38$ at time $\tau \approx 1.25$. The configuration corresponds to a quasi pure advective case ($Pe = 500$, $Re = 200$).

and to the evolution of the velocity of the center of mass. As shown in Fig. 4, these oscillations dampen over time. The oscillation amplitude increases when Re decreases or a increases. The oscillations tend to dampen more quickly with a lower Pe due to more rapid diffusive smearing. Oscillation frequency is directly related to a mean velocity calculated only in the zone outside of the recirculation zones. Thus, it increases when Re or ϵ increases. In addition to properly describing the whole time evolution of the

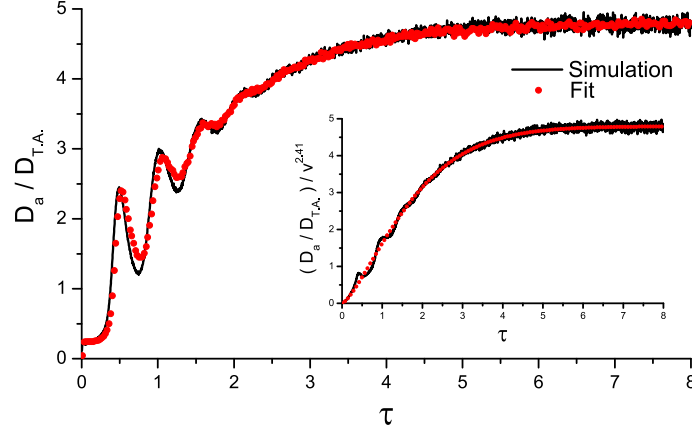


Figure 8. Time evolution of the normalized dispersion coefficient and fit comparison using equ. (24). In this case, $Pe = 50$, $Re = 10$, $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$. The characteristic time to the asymptote is $\tau_c = 4.10$, the asymptotic dispersion coefficient is $D_a^\infty / D_{T.A.} = 4.80$ and the power coefficients are $\gamma = 1.36$ and $\lambda = 2.41$.

longitudinal dispersion, the fit provides us with a robust estimate of the asymptotic value for the dispersion coefficient. We will focus on this observable hereafter.

D. Asymptotic dispersion coefficient as a function of flow and geometry parameters

1. Dependence on the Reynolds and Péclet numbers

For each geometry, the asymptotic dispersion coefficient is computed from the fit of the apparent longitudinal dispersion coefficient with time. In Fig. 9A we show how it varies as a function of Re and Pe . Under conditions with lower Reynolds number, $\tilde{D}_a(t)$ is controlled by the Péclet number. When the Reynolds number increases, $\tilde{D}_a(t)$ increases and then reaches an asymptotic value D_a^∞ at a large Reynolds number. Indeed, when a sufficiently high Reynolds number is reached, the recirculation zone ceases to grow further (or at least grows very slowly). The numerical model is only valid when the flow remains stationary, which requires that no transition to turbulence occur in any part of the system, so we never perform simulation with Reynolds greater than 250. With this limit, we can observe the plateau only for a few geometries that have large values of a . For most of them, only the low Reynolds plateau and the beginning of the dispersion coefficient increase are observed.

Our goal is to find an empirical relation between \tilde{D}_a^∞ and Re and Pe . For a given geometry and for $Pe > 50$, all the curves of \tilde{D}_a^∞ as a function of Re collapse in one by applying a scaling coefficient κ (Fig. 9B). For a given geometry, this scaling coefficient only depends on Pe . As shown in the inset of Fig. 9B, the relation between both is logarithmic :

$$\kappa = \alpha Pe^\beta \quad (25)$$

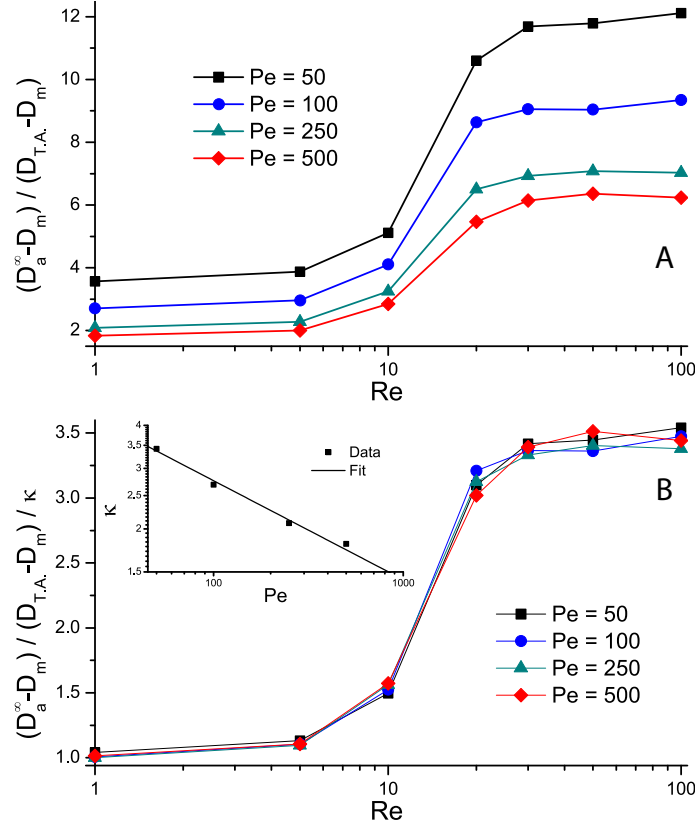


Figure 9. Normalized asymptotic dispersion coefficient as a function of Re for several Pe values (A). B shows the same data once scaled and the inset in B shows the fit of the scaling coefficient κ as a function of Pe . The geometry parameters are $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$.

2. Global scaling

The asymptotic dispersion coefficient values can be described by

$$\tilde{D}_a^\infty(Pe, Re) = [\alpha Pe^\beta] f(Re) \quad (26)$$

that is

$$D_a^\infty(Pe, Re) = D_m \left[1 + \frac{2}{105} (\alpha Pe^{\beta+2}) f(Re) \right] \quad (27)$$

where α and β are coefficients determined for each geometry and $f(Re)$ is a function of Re with small and large asymptotic values at small and large Re , respectively. A linear combination of the error function and the $y = 1$ constant function seems suitable. As the second plateau is never reached for most of the geometries, it is difficult to infer a precise functional shape for the fit.

Equ. 27 can be compared directly with equ. (22). The asymptotic dispersion coefficient description and the Taylor-Aris dispersion coefficient share similarities. The latter classic form is complemented with a correction β to the power of Pe and with an additionnal factor that only depends on the Reynolds number.

Fig. 10 shows the relation between the parameters α and β and the relative amplitude of the aperture fluctuations, a . Several geometries corresponding to the same a but to different cell aspect ratios ϵ share an identical α : this figure suggests that there is no significant dependence of α on ϵ . In contrast, the prefactor α of Eq. (27) increases monotonically with a . Similarly, the exponent parameter β appears to depend weakly on ϵ , but exhibits a marked decreasing trend as a function of a . When a tends to 0, α tends to 1, β to 0 and thus κ tends to 1. This is consistent with the fact that very small values of a correspond to geometries that approach the parallel plate geometry, for which $D_a^\infty = D_{T.A.}$.

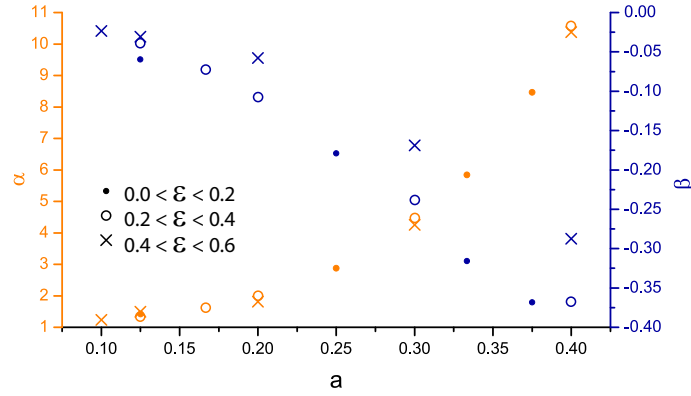


Figure 10. Fitting parameters α (red diamonds) and β (blue disks) as a function of a .

3. Relation between the size of the recirculation zones and the asymptotic dispersion coefficient

In the bottom row of Fig. 3, we plot maps of the normalized asymptotic dispersion coefficient as a function of the relative amplitude of the aperture fluctuations, a , and the Reynolds number, for the same two values of the cell aspect ratio ϵ as chosen to illustrate the size of the recirculation zones in the top row of the same figure. These maps of \tilde{D}_a^∞ have been obtained by interpolating all available \tilde{D}_a^∞ data, measured for various Reynolds numbers and a variety of values of a . For example, the curve in Fig. 9A for $Pe = 100$ is a vertical slice of Fig. 3 at $a = 0.4$. Accordingly, the topography of the \tilde{D}_a^∞ maps in Fig. 3 is consistent with the plots discussed in section IIID 1. In particular, Fig. 3 illustrates that when a goes to 0; \tilde{D}_a^∞ goes to 1 and thus $f(Re)$ to 1.

A comparison of the two rows of Fig. 3 shows that for a given Péclet number value, the dispersion coefficient evolution is tightly correlated to the volume of the recirculation zones. This is a direct consequence of the phenomenology of transport as discussed in section IIIB, and of solute trapping in recirculation zones at the back of the solute cloud.

E. Characteristic time to reach the asymptotic regime as a function of flow and geometry parameters

For each geometry, the characteristic time τ_c necessary to reach the asymptotic regime is obtained from the fit of the time evolution of the apparent longitudinal dispersion coefficient. Fig. 11 shows its evolution as a function of Re for various Pe values. Fig. 11A is obtained with a geometry defined by $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$ while Fig. 11B is for a geometry defined by $\epsilon = 0.19$ and $a = 0.38$. In others words, the values of a are similar but the ϵ values differ by a factor of two. The characteristic time is likely related to the minimum duration needed for a particle to experience the whole cross-sectional profile of velocities by diffusion, and therefore controlled both by the actual value of the diffusion coefficient and by the characteristic transverse distance particles have to cover by diffusion. This is confirmed in Fig. 11. For a given Pe value, the asymptotic regime is clearly reached sooner when the cell mean aspect ratio ϵ is smaller (B case). Also, for a given geometry, the higher the Péclet number, the shorter the characteristic time, reflecting more rapid sampling of the velocity heterogeneity by a greater role of diffusion.

At intermediate Re values (i.e. when the recirculation zones are growing), the trapping of particles delays the asymptotic regime. The curves are shifted toward larger Re values when the Péclet number decreases. When Pe is small, the recirculation zone has to grow significantly (and thus, the Re to increase) before the characteristic time rises. The growth of the recirculation zones (and thus the thinning of the zone where most of the longitudinal flow takes place) induces rapid homogenization in the central zone. This phenomenon leads to a decrease of the characteristic time. Trapping in the recirculation zones and faster mixing in the central zone compete in controlling the characteristic time τ_c . Depending on the geometry, the Péclet number and the Reynolds number, one phenomenon dominates.

When the value of ϵ is large, the asymptotic regime is reached faster for larger Re conditions than for lower Re conditions because of the enhanced mixing in the mainstream. When ϵ is smaller, trapping is predominant and the characteristic time value is lower for large Re conditions than for low Re conditions..

F. Breakthrough curves

Sample breakthrough curves are given in Fig. 12. The concentration is measured at position $x = 50L$, well after the dispersion coefficient has reached its asymptotic value.

The first arrival time is controlled predominantly by the advection and diffusion of a particle traveling at or close to the center of the cell where the longitudinal velocities are fastest. As the zones of recirculation grow, the bulk of the longitudinal flow occurs in an increasingly smaller volume of the cell, thus resulting in larger maximum velocities. Thus, the larger the Reynolds number, the smaller the time needed for the fastest particles to travel through the cells.

Lower Pe values lead to smaller asymptotic dispersion coefficient values, which manifests itself as higher, but narrower peaks in the breakthrough curves. For the parallel

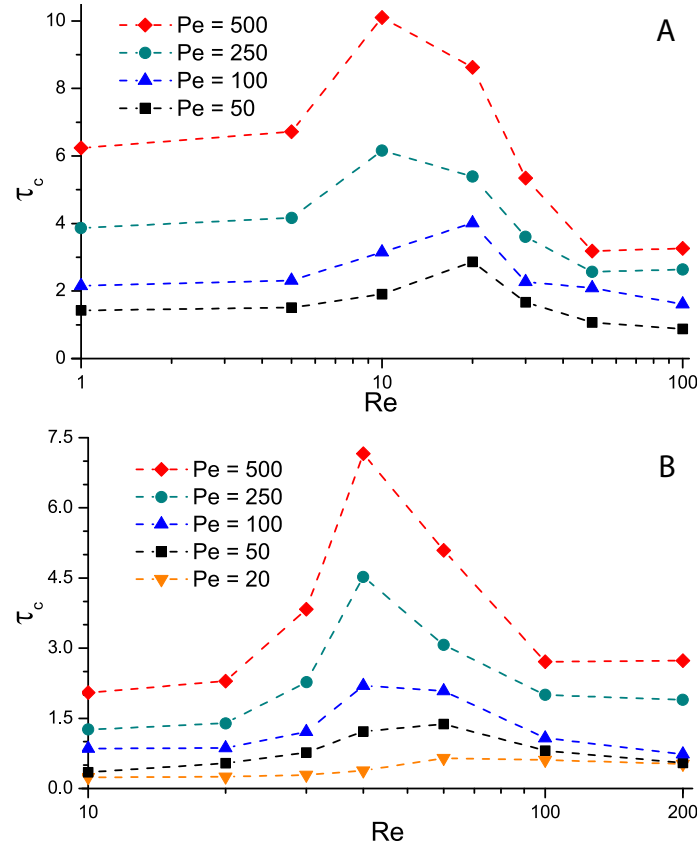


Figure 11. Characteristic time of the asymptotic regime as a function of Re for several Pe values. In A, geometry parameters are $\epsilon = 0.47$ and $a = 0.4$; in B, geometry parameters are $\epsilon = 0.19$ and $a = 0.38$.

plates geometry case, the asymptotic dispersion coefficient is smallest.

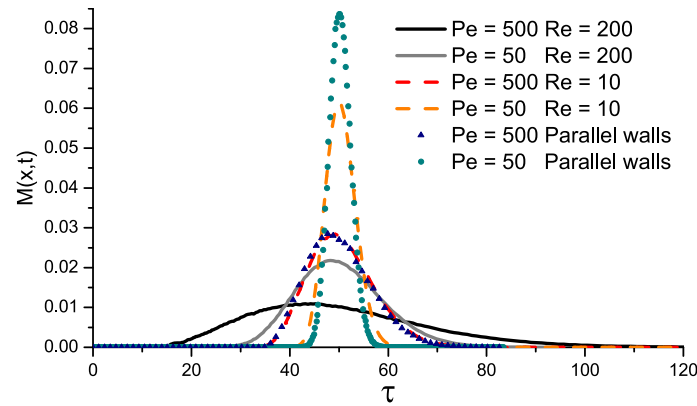


Figure 12. Breakthrough curves after fifty unit cells have been travelled (i. e., at $x = 50L$), for configurations of low and high diffusion ($Pe = 50$ and $Pe = 500$) and for low and high Reynolds numbers ($Re = 10$ and $Re = 200$) in a geometry with $\epsilon = 0.19$ and $a = 0.38$. Additionnaly, two breakthrough curves for a parallel plate geometry with the same mean aperture (i.e. $a = 0$) at $Pe = 50$ and $Pe = 500$ are shown.

IV. CONCLUSION

We have numerically studied the impact of inertial effects on flow and transport in channels of periodically varying aperture. In particular we investigated the conditions under which recirculation zones appear and monitored the volume fraction occupied by these 'transport-delaying' zones as a function of the geometrical parameters (i.e. the aspect ratio of a cell and the relative amplitude of the aperture fluctuations). Recirculation zones grow when the aperture fluctuation, the aspect ratio of the cell or the Reynolds number increase. A range of geometry parameters and Reynolds number values exists for which the volume of the recirculation zones is very sensitive to these parameters. For a number of geometries, Reynolds number values as low as 20 are sufficient to create recirculation zones that impact transport significantly. In such geometries, the recirculation zones can be sufficiently large to occupy up to 75% of the pore volume even when the Reynolds numbers are less than 50. It is important to emphasize that the flow is laminar and not turbulent; recirculation zones that arise from inertial effects are characterized by the asymmetry of our periodic domains relative to the longitudinal reflection plane.

The longitudinal apparent dispersion coefficient reaches an asymptotic value with time, as anticipated from generalized Taylor dispersion theory. The deviation of this asymptotic dispersion coefficient from the equivalent Taylor-Aris value (which corresponds to a parallel plate channel with the same cell aspect ratio and no fluctuation on the boundary) accounts for the impact of the flow complexity on longitudinal transport along the system. We propose an expression for that asymptotic dispersion coefficient (Eq. 27) that is a generalization of the well-known expression by Taylor and Aris [1, 41], and that takes molecular diffusion, the Reynolds number, the Péclet number and the cell geometry into account. The dependence of $D_a^\infty/D_m - 1$ on the Reynolds number, at least for the range of parameters investigated here, is found to be uncorrelated to the other parameters; that is, its influence appears as a separate factor with a given functional form $f(Re)$. The dependence of $D_a^\infty/D_m - 1$ on the Péclet is found to deviate from its form in the well-known Taylor-Aris expression, where it scales as Pe^2 , to a related, but different power law $Pe^{2+\beta}$. The exponent β is controlled by the cell geometry. Another effect of the cell geometry is an additional geometry-controlled prefactor α in $D_a^\infty/D_m - 1$. Both geometric parameters α and $-\beta$ were found not to depend (or only very weakly) on the cell aspect ratio; they are positive increasing functions of the relative amplitude of aperture fluctuations, a . One can expect the asymptotic dispersion coefficient to deviate all the more from the Taylor-Aris dispersion coefficient as the relative amplitude of the aperture fluctuations and the Reynolds number increase, and as the Péclet number decreases. For realistic scenarios, the asymptotic dispersion coefficient value could be up an order of magnitude (or more specifically 12 times) larger than the Taylor-Aris dispersion coefficient. The evolution of the asymptotic dispersion coefficient as a function of the geometry parameters and of the Reynolds number is closely tied to the volume of the recirculation zones, which illustrates in a stunning manner their role in the deviation from the behavior under uniform aperture.

We were also able to infer a functional form for the pre-asymptotic evolution of the dispersion coefficient. Short period initial oscillations of the signal were in particular shown

to be mostly due to oscillations of the average solute velocity as it passes “pores” and “throats” of the medium. The approach to the asymptotic regime occurs over a characteristic time that is typically much larger than the characteristic advection time (for Peclet number of practical interest $Pe > O(1)$), and is also impacted by the presence of recirculation zones. The evolution of that characteristic time as a function of the geometrical parameters, the Reynolds number and the Péclet number is controlled by two oppositely competing phenomena. When the recirculation zones are sufficiently large, the trapping of particles inside them delays the establishment of the asymptotic regime. But when the recirculation zone is even larger, the enhanced mixing in the central longitudinally advecting zone due to the thinning of that zone where most of the flow takes place leads to faster homogenization and thus a decrease in the characteristic time. Depending on the specific parameter values, one phenomenon dominates and the characteristic time can be either larger or smaller than the one measured under low Reynolds number (Stokes) conditions.

In addition to generalizing the theoretical Taylor-Aris dispersion relation to inertial laminar flows, the current study could also be useful to predict longitudinal dispersion in flows at sufficiently large Reynolds and in systems for which the sinusoidal geometry, albeit not exactly describing the actual geometry, is a decent approximation of the real system. It is for example the case for tracer tests under pumping conditions in homogeneous rocks with sufficiently large and well sorted grains.

-
- [1] R. Aris. On the Dispersion of a Solute in a Fluid Flowing through a Tube. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 235(1200):67–77, April 1956.
 - [2] Jacob Bear. *Dynamics of fluids in porous media*. Dover publications, elsevier edition, August 1972.
 - [3] Brian Berkowitz and Jieying Zhou. Reactive solute transport in a single fracture. *Water Resources*, 32(4):901–913, 1996.
 - [4] Diogo Bolster, Marco Dentz, and Jesus Carrera. Effective two-phase flow in heterogeneous media under temporal pressure fluctuations. *Water Resources Research*, 45(5):1–14, May 2009.
 - [5] Diogo Bolster, Marco Dentz, and Tanguy Le Borgne. Solute dispersion in channels with periodically varying apertures. *Physics of Fluids*, 21(5):056601, 2009.
 - [6] Diogo Bolster, Francisco J Valdés-Parada, Tanguy LeBorgne, Marco Dentz, and Jesus Carrera. Mixing in confined stratified aquifers. *Journal of contaminant hydrology*, 120-121:198–212, March 2011.
 - [7] J Bouquain, Y Meheust, and P Davy. Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts. *Journal of contaminant hydrology*, 120-121:184–97, March 2011.
 - [8] H. Brenner. Dispersion Resulting from Flow through Spatially Periodic Porous Media. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering*

- Sciences*, 297(1430):81–133, July 1980.
- [9] Stephen R. Brown. Simple mathematical model of a rough fracture. *Journal of Geophysical Research*, 100(B4):5941–5952, 1995.
 - [10] M Bayani Cardenas. Direct simulation of pore level Fickian dispersion scale for transport through dense cubic packed spheres with vortices. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 10(12), December 2009.
 - [11] M Bayani Cardenas, Donald T Slottke, Richard A Ketcham, and John M. Sharp. Effects of inertia and directionality on flow and transport in a rough asymmetric fracture. *Journal of Geophysical Research*, 114(B6), June 2009.
 - [12] Jesus Carrera, X. Sánchez-Vila, Inmaculada Benet, Agustín Medina, Germán Galarza, and Jordi Guimerà. On matrix diffusion: formulations, solution methods and qualitative effects. *Hydrogeology Journal*, 6(1):178–190, 1998.
 - [13] Kuldeep Chaudhary, M Bayani Cardenas, Wen Deng, and Philip C Bennett. The role of eddies inside pores in the transition from Darcy to Forchheimer flows. *Geophys. Res. Lett.*, 38(24), 2011.
 - [14] Comsol Multiphysics. <http://www.comsol.com/products/multiphysics/>.
 - [15] Gedeon Dagan and Aldo Fiori. The influence of pore-scale dispersion on concentration statistical moments in transport through heterogeneous aquifers. *Water Resources Research*, 33(7):1595, 1997.
 - [16] Marco Dentz and Jesus Carrera. Mixing and spreading in stratified flow. *Physics of Fluids*, 19(1):017107, 2007.
 - [17] Leonardo David Donado, Xavier Sanchez-Vila, Marco Dentz, Jesus Carrera, and Diogo Bolster. Multicomponent reactive transport in multicontinuum media. *Water Resources Research*, 45(11), November 2009.
 - [18] G. Drazer, H. Auradou, J. Koplik, and J. P. Hulin. Self-Affine Fronts in Self-Affine Fractures: Large and Small-Scale Structure. *Physical Review Letters*, 92(1), January 2004.
 - [19] Bruce B Dykaar and Peter K Kitanidis. Macrotransport of a Biologically Reacting Solute Through Porous Media. *Water Resources Research*, 32(2):307, 1996.
 - [20] DA Edwards, M. Shapiro, H. Brenner, and M. Shapira. Dispersion of inert solutes in spatially periodic, two-dimensional model porous media. *Transport in Porous Media*, 6(4):337–358, August 1991.
 - [21] M. E. Erdogan and P. C. Chatwin. The effects of curvature and buoyancy on the laminar dispersion of solute in a horizontal tube. *J. Fluid Mech*, 29:465–484, 1967.
 - [22] Aldo Fiori. On the influence of pore-scale dispersion in nonergodic transport in heterogeneous formations. *Transport in porous media*, pages 57–73, 1998.
 - [23] John H. Forrester and Donald F. Young. Flow through a converging-diverging tube and its implications in occlusive vascular disease - II. *Journal of Biomechanics*, 3(3):307–316, May 1970.
 - [24] JE Garcia and Karsten Pruess. Flow instabilities during injection of CO₂ into saline aquifers. In *Proceedings, Tough Symposium 2003*, 2003.
 - [25] Lynn W Gelhar. Stochastic subsurface hydrology from theory to applications. *Water Resources Research*, 22(9S):135S, 1986.

- [26] W. N. Gill and R. Sankarasubramanian. Exact Analysis of Unsteady Convective Diffusion. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 316(1526):341–350, May 1970.
- [27] Roy Haggerty and Steven M Gorelick. Multiple-Rate Mass Transfer for Modeling Diffusion and Surface Reactions in Media with Pore-Scale Heterogeneity. *Water Resources Research*, 31(10):2383, 1995.
- [28] JGI Hellström and TS Lundström. Flow through porous media at moderate Reynolds number. *International Scientific Colloquium: Modelling for Material Processing*, (2):129–134, 2006.
- [29] D. A. Hoagland and R. K. Prud’Homme. Taylor-aris dispersion arising from flow in a sinusoidal tube. *AIChE Journal*, 31(2):236–244, February 1985.
- [30] Peter K Kitanidis and Bruce B Dykaar. Stokes flow in a slowly varying two-dimensional periodic pore. *Transport in porous media*, pages 89–98, 1997.
- [31] D.L. Koch and J.F. Brady. A non-local description of advection-diffusion with application to dispersion in porous media. *Journal of Fluid Mechanics*, 180(1):387–403, April 1987.
- [32] Donald L. Koch and John F. Brady. The symmetry properties of the effective diffusivity tensor in anisotropic porous media. *Physics of Fluids*, 30(3):642, 1987.
- [33] M. Latini and A.J. Bernoff. Transient anomalous diffusion in Poiseuille flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 441:399–411, 2001.
- [34] Tanguy Le Borgne, D. Bolster, M. Dentz, P. de Anna, and A. Tartakovsky. Effective pore-scale dispersion upscaling with a correlated continuous time random walk approach. *Water Resources Research*, 47(12):1–10, December 2011.
- [35] Laurie E Locascio. Microfluidic mixing. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 379(3):325–7, June 2004.
- [36] Y Lucas, M Panfilov, and M Bues. High velocity flow through fractured and porous media: the role of flow non-periodicity. *European Journal of Mechanics - B/Fluids*, 26(2):295–303, March 2007.
- [37] Takashi Masuoka, Yasuyuki Takatsu, and Tomomi Inoue. CHAOTIC BEHAVIOR AND TRANSITION TO TURBULENCE IN POROUS MEDIA. *Microscale Thermophysical Engineering*, 6(4):347–357, January 2002.
- [38] Steve Rosencrans. Taylor Dispersion in Curved Channels. *SIAM Journal on Applied Mathematics*, 57(5):1216, 1997.
- [39] J. Salles, J.-F. Thovert, R. Delannay, L. Prevors, J.-L. Auriault, and P. M. Adler. Taylor dispersion in porous media. Determination of the dispersion tensor. *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics*, 5(10):2348, 1993.
- [40] Daniel M. Tartakovsky and Dongbin Xiu. Stochastic analysis of transport in tubes with rough walls. *Journal of Computational Physics*, 217(1):248–259, September 2006.
- [41] Geoffrey Taylor. Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 219(1137):186, 1953.
- [42] Anubhav Tripathi, Ozgur Bozkurt, and Anuj Chauhan. Dispersion in microchannels with temporal temperature variations. *Physics of Fluids*, 17(10):103607, 2005.

- [43] RA Wooding. Instability of a viscous liquid of variable density in a vertical Hele-Shaw cell. *J. Fluid Mech*, 7(04):501, March 1960.
- [44] Dongbin Xiu and Daniel M. Tartakovsky. Numerical Methods for Differential Equations in Random Domains. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 28(3):1167, 2006.
- [45] Hua Ye, Diganta B. Das, James T. Triffitt, and Zhanfeng Cui. Modelling nutrient transport in hollow fibre membrane bioreactors for growing three-dimensional bone tissue. *Journal of Membrane Science*, 272(1-2):169–178, March 2006.
- [46] Vanessa Zavala-Sanchez, Marco Dentz, and Xavier Sanchez-Vila. Characterization of mixing and spreading in a bounded stratified medium. *Advances in Water Resources*, 32(5):635–648, May 2009.
- [47] R.W. Zimmerman, S. Kumar, and G.S. Bodvarsson. Lubrication theory analysis of the permeability of rough-walled fractures. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 28(4):325–331, July 1991.

Chapitre 5

Impact des effets densitaires sur le transport dans un chenal d'ouverture périodique

La présence d'un soluté à des concentrations significatives modifie localement l'écoulement, promouvant une composante verticale du champ de vitesse sous l'effet de la flottabilité locale induite par le gradient de masse volumique. Comme on l'a vu dans le chapitre 3 en configuration de chenal d'ouverture constante, le nuage de soluté peut être transporté dans une zone où les conditions d'écoulement peuvent être différentes (par exemple, les vitesses peuvent être plus faibles). Toutefois, dans une fracture lisse, l'effet de retard est limité car le soluté ne peut pas s'isoler du chenal principal. Dans ce chapitre, on étudie qualitativement l'impact des effets densitaires dans un chenal d'ouverture variable. La présence de cavité doit permettre au soluté de s'y loger et d'en sortir ensuite plus lentement.

5.1 Modèle

Les effets densitaires sont pris en compte par un couplage entre l'écoulement et le transport de manière identique aux simulations présentées en section 3.2.1. La géométrie choisie est celle d'un chenal d'ouverture sinusoïdale présentée en section 4.1.1. Plus précisément, la distribution spatiale des demi-ouvertures locales est une fonction sinus (équation (4.1)), avec une demi-ouverture moyenne \bar{h} , une amplitude maximum de la variation d'ouverture h' et une longueur de cellule L (voir figure 4.1). Le domaine considéré est constitué de deux pores consécutifs. Plus particulièrement, seule la géométrie de paramètres $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$ ($\bar{h} = 2,5 \cdot 10^{-4}\text{m}$, $h' = 2 \cdot 10^{-4}\text{m}$ et $L = 1,075 \cdot 10^{-3}\text{m}$) est étudiée. Le choix de cette géométrie particulière est dicté par la volonté d'obtenir en premier lieu une analyse qualitative des effets densitaires dans un chenal d'ouverture variable réaliste. En effet, les dimensions choisies sont compatibles avec celles d'un pore dans un sable ou celles d'une fracture traversant une petite cavité. Les équations de l'écoulement (Navier-Stokes, équation (1.41) et conservation de la masse, équation (1.1)) et du transport (ADE, équation (1.28)) sont résolues par la méthode des éléments finis décrite en section 2.

Conditions aux limites et initiales

En entrée de chenal, sur toute la frontière :

- un flux moyen est imposé ; cette condition est similaire à l'ajout d'un chenal lisse en amont de l'entrée du modèle, en entrée duquel serait imposé un profil de vitesse parabolique,
- la concentration est imposée. Afin d'éviter toute discontinuité, la distribution temporelle de concentration suit une distribution gaussienne. Toutefois, la variance est faible afin que la condition d'injection soit proche d'une distribution de Dirac.

En sortie de chenal, sur toute la frontière :

- une valeur unique de pression est imposée sur toute la frontière,
- une condition de flux advectif est appliquée.

Au temps initial, la concentration vaut 0 en tout point du domaine. Le champ de vitesse initial est calculé pour un écoulement du fluide pur.

Plages de paramètres

Les conditions d'écoulement sont choisies pour avoir une valeur du nombre de Reynolds faible ($Re = 0,05$). Il n'y a donc aucune zone de recirculation. Le fluide est de l'eau, on utilise $\rho = 10^3 \text{ kg.L}^{-1}$, $\eta = 10^{-3} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ et $\bar{u} = 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$. Les conditions de transport sont caractérisées par $Pe = 100$, soit $D_m = 5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$. La concentration maximale initiale C_0 s'échelonne de 1 à 50 g.L^{-1} . Les valeurs correspondantes de Ar^* (que nous appelons nombre d'Archimède advectif, défini dans l'équation (3.8) comme le rapport

entre les ordres de grandeur des forces densitaires et des forces visqueuses) sont comprises entre 24 et 1226.

5.2 Etude qualitative

La figure 5.1 montre l'évolution du champ de concentration à 3 temps après qu'un soluté de concentration initiale $C_0 = 35 \text{ g.L}^{-1}$ ($Ar^* = 858$) a été injecté. Les lignes de courant sont également indiquées. Comme on le voit dans le second pore, lorsque le soluté est absent, les lignes d'écoulement suivent les parois et aucune zone de recirculation n'est présente.

Aux temps courts, le soluté est présent à une concentration suffisamment élevée pour que le gradient local de masse volumique induise un écoulement vertical descendant significatif. Le soluté suit alors la paroi inférieure du chenal. Sa présence provoque également la formation temporaire d'une zone de recirculation dans la concavité supérieure du chenal.

Une part importante du nuage continue ensuite de tomber vers la cavité inférieure et s'y loge. A partir de ce temps (figure 5.1, $\tau = 0,93$), les effets densitaires s'opposent au gradient de pression et à la diffusion. Au fur et à mesure que le soluté s'étale par dilution, la concentration maximale diminue et les effets densitaires faiblissent. Le soluté quitte alors petit à petit le pore. Toutefois, comme le nuage était temporairement confiné dans la cavité, il conserve une concentration maximale supérieure à celle d'un nuage ne subissant pas d'effet densitaire. En effet, ce dernier est dilué plus rapidement.

Durant cet épisode transitoire, le transport du soluté à travers le pore est retardé. Ce retard est issu directement des effets densitaires qui affaiblissent l'importance de l'advection dans le transport mais aussi du fait que le soluté est situé dans une zone où l'écoulement est plus lent (i.e. la vitesse est la plus faible près des parois et à la distance $x = L/2$).

La figure 5.2 montre les courbes de restitution en sortie du premier pore pour plusieurs valeurs de concentration initiale. La valeur $C_0 = 1 \text{ g.L}^{-1}$ correspond à des conditions où les effets densitaires n'ont aucun impact sur le transport. On observe que les effets densitaires provoquent un aplatissement des courbes et une queue de restitution beaucoup plus importante. Le pic de concentration a une amplitude beaucoup plus faible. Le centre de masse du soluté est donc retardé significativement.

On peut également comparer les courbes de restitution en sortie du premier et du second pore pour 2 concentrations d'injection (figure 5.3). Le rapport entre les concentrations des pics à $x = L$ et $x = 2L$ est le même (environ 2), cela signifie que les deux nuages de soluté ont subi la même dilution et donc que le transport dans le second pore n'a pas été influencé par des effets densitaires. Cela s'explique par le fait que la concentration du soluté quittant le premier pore est beaucoup plus faible et n'influence plus l'écoulement que marginalement.

L'influence des effets densitaires dans ce type de géométrie est donc très transitoire. Dès que le soluté a pu entrer dans une zone où l'écoulement est plus lent, une partie significative y restera piégée tant que sa concentration n'aura pas baissé suffisamment par dilution.

Lors d'une injection de soluté plus longue la cavité inférieure du pore va se remplir de soluté. La concentration y devient presque homogène et les effets densitaires ne provoquent plus la chute du soluté qui continue d'entrer dans le pore. Le transport dans ce pore est alors plus proche de celui obtenu sans effet densitaire. Chaque pore peut donc stocker une quantité limitée de soluté au-delà de laquelle les effets densitaires ont un impact plus faible. Le même processus de remplissage peut alors se produire dans le pore suivant, et ainsi de suite. Cet effet en cascade se déroule tant que le soluté est injecté. Après l'arrêt de l'injection, le soluté stocké dans les pores pourra en sortir. Le mécanisme sera similaire à celui décrit en précédemment et la décroissance de la concentration sera probablement lente, induisant une queue de restitution longue.

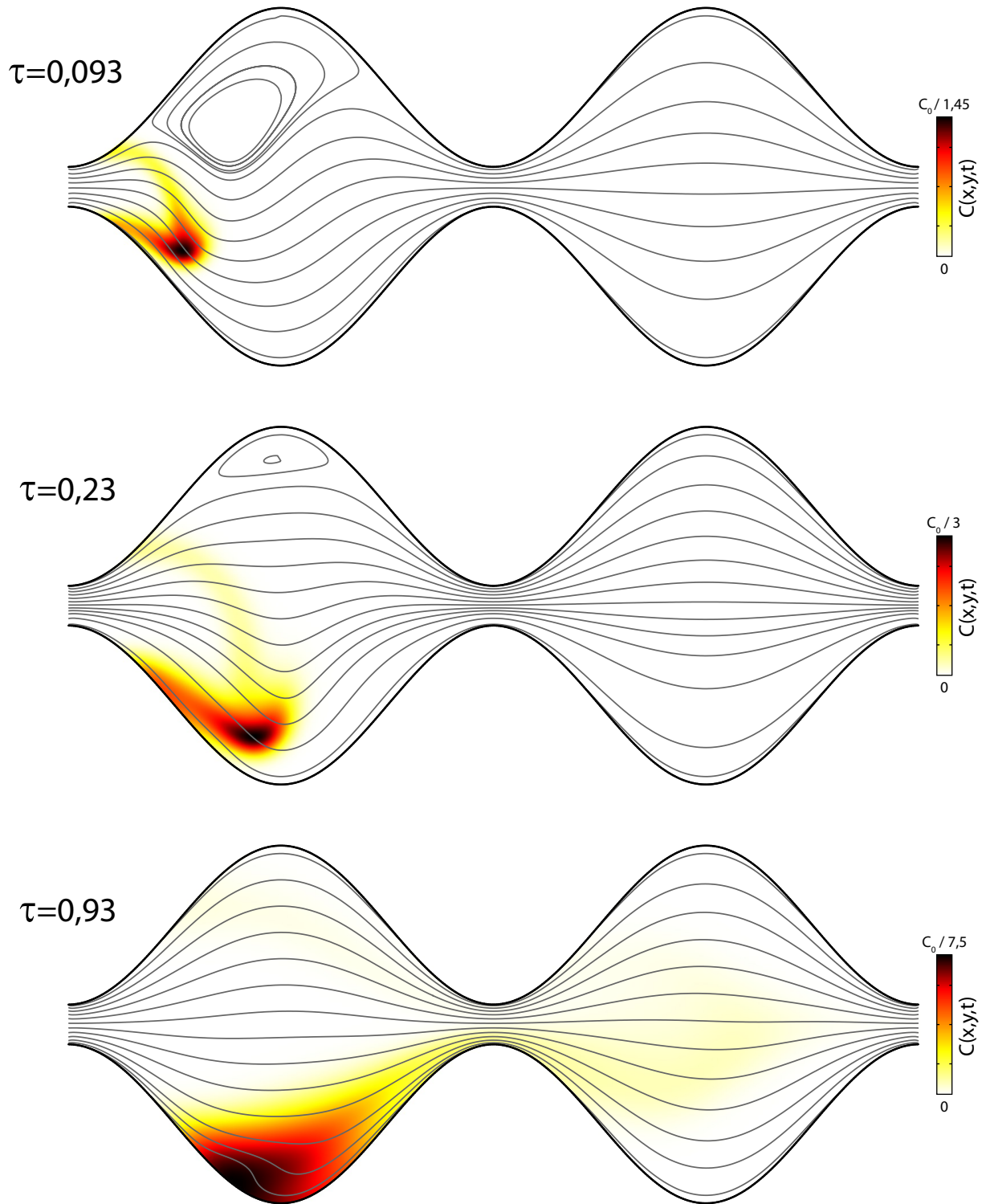


FIGURE 5.1 – Cartes du champ de concentration lors du transport d'un soluté avec effets densitaires pour 3 temps adimensionnels $\tau = t\bar{u}/L$. $Pe = 100$, $Re = 0,05$ et $Ar^* = 858$ ($C_0 = 35 \text{ g.L}^{-1}$).

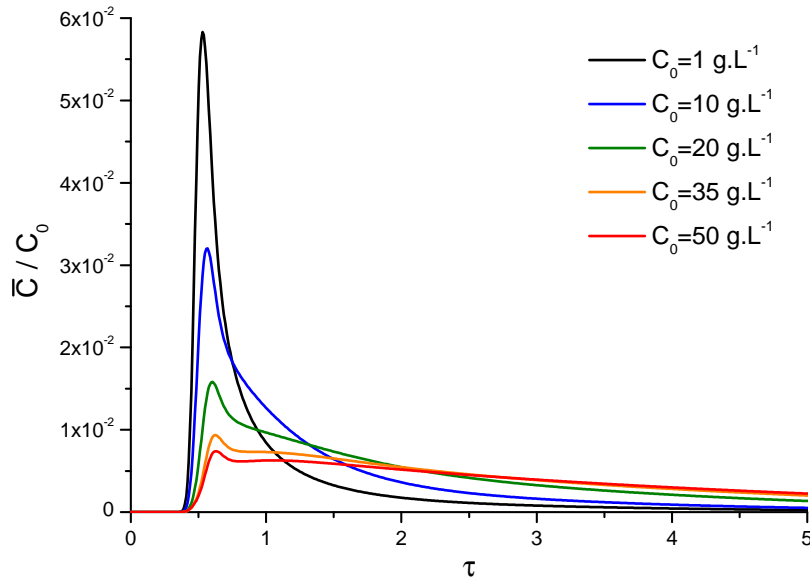


FIGURE 5.2 – Courbes de restitution à la position $x = L$ (i.e. à la sortie du premier pore) pour plusieurs concentration d'injection C_0 . τ est défini par $\tau = t \bar{u}/L$. L'écoulement et le transport sont caractérisés respectivement par $Re = 0,05$ et $Pe = 100$.

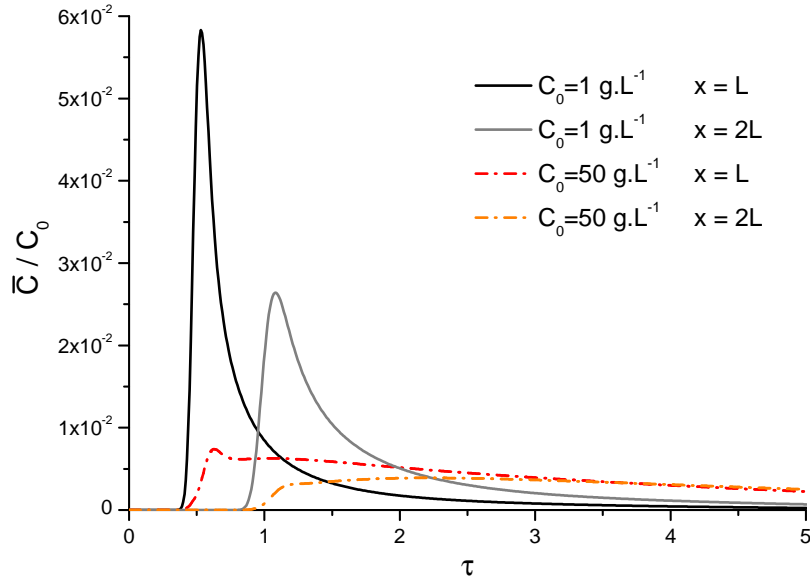


FIGURE 5.3 – Courbes de restitution pour deux concentrations d'injection C_0 et à deux positions (à la sortie du premier pore et à la sortie du second pore). τ est défini par $\tau = t \bar{u}/L$. L'écoulement et le transport sont caractérisés respectivement par $Re = 0,05$ et $Pe = 100$.

5.3 Conclusions

Nous avons étudié qualitativement la dispersion d'un soluté dans un chenal d'ouverture variable lorsque les effets densitaires sont importants. Sous l'effet de la gravité et du gradient de masse volumique, le soluté tombe dans la cavité inférieure du chenal. Les effets densitaires s'opposent alors à la diffusion et au gradient de pression imposé et contribue à garder le soluté dans la cavité. Cet équilibre persiste tant que la concentration est suffisamment élevée. A terme, la dilution du soluté affaiblit les effets densitaires et le soluté sort lentement du pore.

Les effets densitaires provoquent (i) un retard du centre de masse du nuage de soluté qui est temporairement piégé dans la cavité inférieure (ii) une diminution de la concentration en tête de nuage (l'amplitude du premier pic des courbes de restitution est diminuée) et (iii) une augmentation de la concentration aux temps plus longs (le soluté piégé a moins été dilué). Les queues des courbes de restitution sont donc particulièrement longues.

Chapitre 6

Lois d'échelle - Situations pratiques

Ce chapitre synthétise les effets étudiés dans la thèse et les place dans un contexte pratique. On s'intéresse aux plages de paramètres pour lesquelles les effets inertiels et densitaires pourraient avoir un impact significatif dans une situation réelle. Pour cela on définit deux conditions de géométrie et deux conditions d'écoulement. On distingue les milieux dont la dimension caractéristique d'ouverture est micrométrique de ceux de dimensions millimétriques et plus. On choisit également de dissocier l'écoulement naturel de l'écoulement forcé (par pompage par exemple).

6.1 Conditions d'écoulement dans un chenal idéalisé

Milieu fracturé

Dans un milieu fracturé, les études hydrodynamiques permettent en général de caractériser les chenaux d'écoulement préférentiels grâce à des valeurs de conductivité hydraulique. Par exemple, après un essai de pompage, on essaie généralement de reproduire la courbe de rabattement en fonction du temps grâce à un modèle (ou une solution analytique). La conductivité hydraulique est un des paramètres de calage du modèle. En première approximation, on peut faire l'hypothèse que ces chenaux sont des fractures uniques planes. On peut alors utiliser la loi cubique pour déterminer un ordre de grandeur d'ouverture des fractures :

$$K = \frac{\rho g b^2}{3\eta} \quad (6.1)$$

En combinant la loi de Darcy et la loi cubique, on obtient la relation entre la vitesse moyenne d'écoulement, l'ouverture de la fracture et le gradient de charge :

$$\bar{u} = -\frac{\rho g}{3\eta} b^2 \nabla h \quad (6.2)$$

La figure 6.1 montre cette relation pour deux valeurs élevées du gradient de charge ∇h (10% et 40%). Elle permet d'estimer l'ordre de grandeur des vitesses maximales qu'il est possible d'obtenir lors d'essais de pompage. L'écoulement autour du puits de pompage est en général radial, la vitesse moyenne dépend donc de la distance au puits de pompage. De plus, le gradient de charge est lui aussi variable en fonction de la distance au puits.

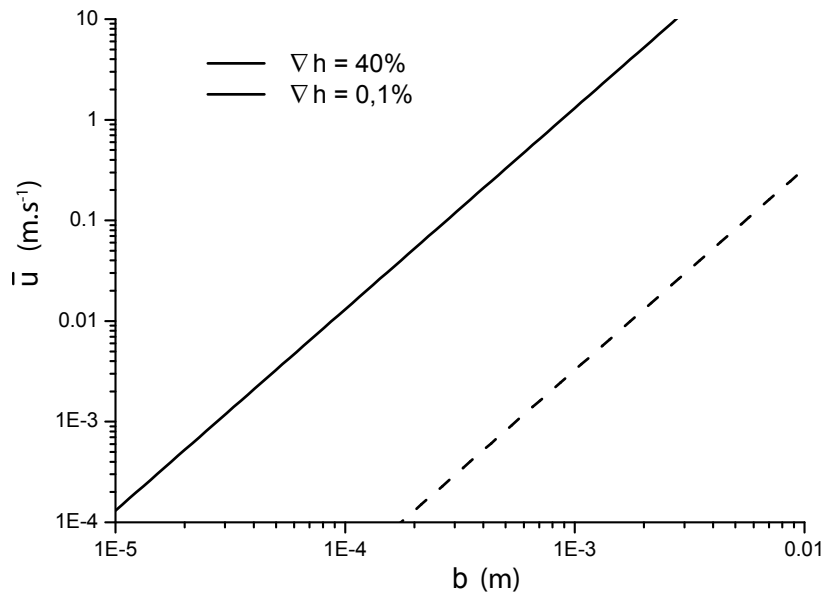


FIGURE 6.1 – Relation entre la vitesse moyenne d'écoulement \bar{u} et la demi-ouverture d'une fracture pour deux valeurs de gradient de charge (10% et 40%).

Milieu poreux

Lorsqu'on souhaite estimer la valeur de conductivité hydraulique d'un milieu poreux en fonction de la taille des grains de celui-ci, la théorie la plus répandue est celle de Kozeny, complétée ensuite par Carman. Ils représentent le milieu poreux comme une empilement de tubes ondulés de même longueur. En résolvant l'équation de Navier-Stokes dans tous les tubes (chacun étant de section circulaire), ils obtiennent l'équation de Kozeny-Carman, reliant la conductivité hydraulique K au diamètre moyen des grains constituant le milieu, d_m , ainsi qu'à la porosité n (Bear (1972)) :

$$K = \left(\frac{\rho g}{\eta} \right) \left[\frac{n^3}{(1-n)^2} \right] \left(\frac{d_m^2}{180} \right) \quad (6.3)$$

En combinant la loi de Darcy et l'équation de Kozeny-Carman, on obtient la relation entre la vitesse moyenne d'écoulement, le diamètre moyen des grains et le gradient de charge :

$$\bar{u} = - \frac{\rho g}{180\eta} \left(\frac{n^2}{(1-n)^2} \right) d_m^2 \nabla h \quad (6.4)$$

Par la suite, on fait l'hypothèse que la taille des pores est du même ordre de grandeur que la taille des grains. On remarque la similarité entre les équations 6.2 et 6.4. Si on assimile la demi-ouverture au rayon du pore, les deux équations sont équivalentes lorsque la porosité vaut environ 80%.

On remarquera que lorsque les effets inertiels sont importants, la conductivité hydraulique devient dépendante de la vitesse d'écoulement. Plus particulièrement, elle décroît lorsque la vitesse augmente (Chaudhary et al. (2011)). Dans ces conditions, la conductivité hydraulique telle qu'estimée par l'équation (6.3) est surestimée. Toutefois, dans l'exemple donné par Chaudhary et al. (2011), lorsque le nombre de Reynolds atteint 100, la conductivité hydraulique a diminué de moins d'un facteur 2, la sensibilité de la conductivité hydraulique au nombre de Reynolds est donc relativement faible.

6.2 Situations pratiques dans lesquelles les effets inertiels et densitaires sont significatifs

On cherche à identifier les conditions pratiques dans lesquelles les effets inertiels et densitaires peuvent ou non être négligeables. Pour cela, on définit deux conditions de géométrie et deux conditions d'écoulement. On distingue les milieux dont la dimension caractéristique d'ouverture est micrométrique de ceux de dimensions millimétriques et plus. On choisit également de dissocier l'écoulement naturel de l'écoulement forcé. La figure 6.2 synthétise les résultats.

6.2. Situations pratiques dans lesquelles les effets inertiels et densitaires sont significatifs

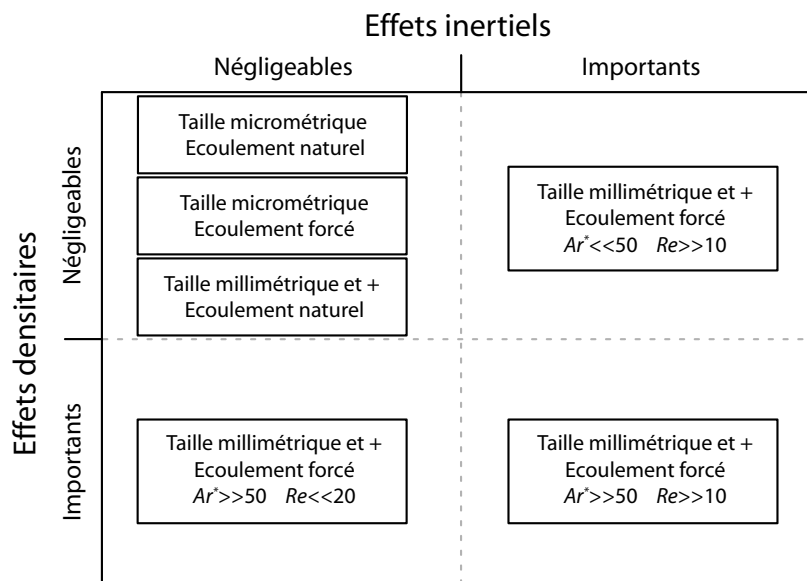


FIGURE 6.2 – Résumé des conditions dans lesquelles les différentes typologie des effets densitaires et inertiels peuvent être rencontrées.

6.2.1 Effets densitaires

Après une injection ponctuelle de soluté dans une fracture plane horizontale, celui-ci, sous l'effet induit par les gradients de masse volumique, tombe vers la paroi inférieure. Localement, le champ de vitesse est perturbé. Comme détaillé dans le chapitre 3, ce mouvement modifie le transport du soluté : (i) le centre de masse du nuage est retardé (ii) la dispersion du nuage est modifiée. Selon les conditions, la variance du nuage peut devenir inférieure ou supérieure à celle obtenue après transport sans effet densitaire. Quelles que soient les conditions, un régime asymptotique est toujours atteint. Le coefficient de dispersion tend alors vers une valeur constante dont l'expression a été déterminée par Taylor et Aris.

Les effets densitaires étudiés ont lieu quelles que soient les conditions d'écoulement, il y a donc peu de contraintes sur la valeur du nombre de Reynolds. Dès que la valeur de Ar^* dépasse 50, on peut considérer que les effets densitaires interviennent. Toutefois, plus l'observation du nuage sera tardive, plus le temps de retard du nuage et la modification de la variance deviendront négligeable par rapport au temps de transport et à la valeur de la variance, respectivement. Plus spécifiquement, c'est le rapport entre le temps au moment de l'observation (t_{obs}) et le temps caractéristique du régime asymptotique ($t_c = b^2/D_m$) qui doit rester suffisamment faible. Le temps t_{obs} est lié à la vitesse d'écoulement \bar{u} et à la distance d'observation d :

$$t_{\text{obs}} = \frac{d}{\bar{u}} \quad (6.5)$$

La condition $t_c \simeq t_{\text{obs}}$ équivaut à $d \simeq b Pe$. Si cette condition est vérifiée et que la valeur de Ar^* est suffisamment grande (supérieure à 50), les effets densitaires sont susceptibles d'avoir un impact important sur le transport. Etant donné que Ar^* est proportionnel à $1/\bar{u}$, il est nécessaire de ne pas avoir de vitesse trop élevée. De manière générale, les effets densitaires peuvent être significatifs dans des chenaux dont l'ouverture caractéristique est au moins millimétrique lorsque l'écoulement y est forcé.

6.2.2 Effets inertiels

Comme on l'a vu dans le chapitre 4, lorsque les effets inertiels deviennent importants, des zones de recirculation se forment dans les concavités du chenal. La présence de ces zones de recirculation modifie le transport de soluté car (i) la taille du chenal principal d'écoulement se réduit, induisant des vitesses d'écoulement plus élevées et un cisaillement plus fort, (ii) lorsque le soluté entre (purement par diffusion) dans la zone de recirculation, il peut y être piégé pendant une durée significative. De manière générale, lorsque les effets inertiels sont importants, le coefficient de dispersion augmente.

La présence d'effets inertiels dépend uniquement du nombre de Reynolds Re . Prenons l'exemple d'une géométrie où la variation relative d'ouverture est significative. On choisit le couple de paramètres $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$. Les zones de recirculations deviennent importantes lorsque $Re > 15$ et elles sont pleinement développées lorsque $Re > 50$.

En insérant l'équation (6.2) ou l'équation (6.4) dans la définition du nombre de Reynolds, il est possible de déterminer, pour un fluide et un gradient de charge donnés, la valeur d'ouverture respectant les hypothèses respectives des lois cubique, de Kozeny-Carman et de Darcy. Ainsi, dans un chenal soumis à un gradient de charge de 10%, si la loi de Darcy et la loi cubique sont respectées, la condition de $Re > 50$ est atteinte lorsque l'ouverture vaut environ $5 \cdot 10^{-4}$ m. La vitesse d'écoulement est alors de $0,1 \text{ m.s}^{-1}$. Dans un milieu poreux homogène soumis à un gradient de charge de 10%, si la loi de Darcy et l'équation de Kozeny-Carman sont respectées, la condition de $Re > 50$ est atteinte lorsque le diamètre moyen des pores vaut environ $5 \cdot 10^{-3}$ m. Les conditions réalistes pour que les effets inertiels soient significatifs correspondent donc à un écoulement forcé dans des chenaux dont l'ouverture caractéristique est au moins millimétrique.

Il est important de rappeler que des zones de recirculations peuvent également apparaître dans des conditions d'écoulement plus lent (*Chaudhary et al. (2011)*). Les conditions de l'écoulement de Stokes sont alors respectées et l'écoulement est réversible (i.e. les zones de recirculation sont symétrique par rapport à la ligne verticale passant par le centre du pore). L'impact sur le transport est alors analogue à celui observé à nombre de Reynolds élevé. Il est donc probable que le coefficient de dispersion sera déjà plus élevé que celui

prévu par la théorie de Taylor-Aris à des vitesses d'écoulement plus faibles mais ce ne sera pas dû à des effets inertiels.

6.3 Cas réels

6.3.1 Effets densitaires dans une fracture lisse

Étudions les expériences menées par *Kang et al.* (2011) sur le site expérimental de Ploemeur. Lors d'un essai de traçage, le soluté injecté entre dans une fracture dont l'ouverture est estimée à environ 5mm (dans les premières dizaines de centimètres autour du puits). La vitesse d'écoulement moyenne est estimée à environ $2 \cdot 10^{-3}$ m.s⁻¹. Le soluté utilisé (de la fluorescéine) a un coefficient de diffusion moléculaire d'environ $5 \cdot 10^{-10}$ m².s⁻¹. Le nombre de Péclet est donc estimé à $Pe \simeq 2 \cdot 10^4$. En choisissant une concentration d'injection de 10 g.L⁻¹, $Ar^* \simeq 1200$. On remarque qu'au moment de l'arrivée du soluté, le temps adimensionnel $\tau = t/t_c$ vaudra environ 0,25. Le régime asymptotique ne sera donc pas atteint. Toutefois, la majorité des effets liés aux effets densitaires auront eu lieu (à $\tau = 0,25$, le coefficient de dispersion est très proche de sa valeur asymptotique et le temps de retard X_G/\bar{u} est également presque stabilisé). La valeur de Pe est très élevée et au-delà de la plage étudiée. On peut toutefois faire l'hypothèse (par extrapolation à partir de la figure 6b de l'article en annexe du chapitre 3) qu'avec une telle valeur de Pe , τ_r aurait une valeur autour de 0,04. Le temps de retard serait alors $X_G/\bar{u} \simeq 500$ s. Dans les conditions de l'expérience, l'ordre de grandeur du temps moyen d'arrivée du nuage est de 1h. Le rapport entre le retard et le temps d'arrivée est donc estimé à plus de 10%. Concernant la valeur de la variance, on estime $\tau_s = 0,03$ (par extrapolation à partir de la figure 7b de l'article en annexe du chapitre 3). L'écart relatif entre les variances avec et sans effets densitaires serait d'environ -9%. Cela correspond à un écart relatif entre les écart-types de -18%.

Lors de l'analyse des courbes de restitution, le retard du temps moyen d'arrivée du soluté et la diminution de la variance peuvent donc biaiser les interprétations. Par exemple, la vitesse moyenne d'écoulement peut être sous-estimée. L'utilisation de modèles négligeant ce type d'effet peut donc aboutir à des écarts de valeurs significatifs pour les paramètres de calage utilisés.

6.3.2 Effets inertiels dans un milieu fracturé

Dans leurs travaux, *Novakowski et al.* (2006) estiment expérimentalement les vitesses d'écoulement dans une fracture (ou, plus certainement, un réseau restreint de fractures). Dans l'une des expériences, ils évaluent l'ouverture de fracture étudiée à environ 200µm. Lors de l'essai de traçage, la vitesse est estimée à environ 10^{-4} m.s⁻¹. Dans ces conditions, le nombre de Reynolds est faible ($Re = 0,02$), aucun effet inertiel n'est attendu. Pour

atteindre un nombre de Reynolds de 15, il est nécessaire d'appliquer un gradient charge très élevé ($\nabla h > 5$). En pratique, ces conditions sont quasiment impossible à atteindre.

Dans les expériences menées par *Kang et al.* (2011) sur le site expérimental de Ploemeur, les essais de traçage en push-pull sont effectuées à un débit de 5 L.min^{-1} . Lors de l'expérience, des packers sont utilisés afin d'isoler une fracture (ou probablement un réseau de quelques fractures). Si on fait l'hypothèse que la plupart du débit imposé s'écoule dans une seule fracture (dont l'ouverture est estimée millimétrique), on peut estimer les ordres de grandeur des vitesses d'écoulement en fonction de la distance au puits. Jusqu'à une distance de quelques dizaines de centimètres, les vitesses sont supérieures à 10^{-2} m.s^{-1} . Dans cette zone, le nombre de Reynolds est supérieur à 15. Il est donc probable que lors de l'entrée du soluté dans le milieu, son transport soit modifié par les effets inertiels.

Dans un autre essai de traçage des mêmes auteurs où le puits pompé est différent du puits d'injection, l'ordre de grandeur pour la vitesse moyenne de transport du soluté est de 10^{-3} m.s^{-1} . Celle-ci est estimée à partir des courbes de restitution. La nature radiale de l'écoulement autour du puits de pompage induit que la vitesse près du puits est supérieure à la vitesse moyenne de transport. Localement, les conditions les plus favorables sont donc similaires au traçage en push-pull et les effets inertiels impactent le transport.

6.4 Conclusions

Nous avons identifié les conditions pratiques dans lesquelles les effets inertiels et densitaires peuvent ou non être négligeables. Nous nous sommes intéressés aux plages de paramètres pour lesquelles ils peuvent avoir un impact significatif. Pour cela, nous avons distingué les milieux dont la dimension caractéristique d'ouverture du chenal est micro-métrique de ceux de dimensions millimétriques et plus. Nous avons également dissocié l'écoulement naturel de l'écoulement forcé. De manière générale, pour que les effets densitaires et inertiels soient importants, il est nécessaire que l'ouverture caractéristique du chenal (que ce soit une fracture ou un pore) soit au moins millimétrique et que l'écoulement soit forcé (typiquement, par pompage). Pour les effets inertiels, il faut également que le nombre de Reynolds soit bien supérieur à 10. Pour les effets densitaires, la valeur de Ar^* , que nous appelons nombre d'Archimède advectif, doit être bien supérieure à 50.

Conclusions et perspectives

Dans les milieux hétérogènes, la distribution des flux est complexe et pose des difficultés pour la prédiction du transport de soluté. L'hétérogénéité des propriétés du milieu provoque une hétérogénéité des vitesses et donc de la chenalisation. Une part importante du fluide et du soluté transitant par ces chemins préférentiels, il est crucial de représenter au mieux les processus qui y ont lieu. Pour cela, il est nécessaire d'identifier ces processus et de quantifier leurs effets. Toutefois, le manque d'information sur la localisation et les caractéristiques des chenaux ainsi que les limites techniques (de mesure et de calcul) ne permettent pas de décrire le transport à l'échelle d'un site par les équations valides à l'échelle hydrodynamique. Il est nécessaire d'effectuer un changement d'échelle et de faire des hypothèses plus ou moins fortes.

Les principaux objectifs de cette thèse étaient de caractériser l'impact de deux effets négligés dans la plupart des études hydrogéologiques. Le premier effet survient lorsque la présence du soluté modifie significativement la masse volumique du fluide, induisant une modification des vitesses d'écoulement. Ces effets densitaires, dans le cas d'un soluté plus dense que le fluide, provoquent la chute du nuage vers une zone d'écoulement différente. Le second effet est lié au nombre de Reynolds. Lorsque l'écoulement est rapide (ou la viscosité du fluide faible), des zones quasiment immobiles apparaissent dans les cavités. Elles impactent l'écoulement car celui-ci a alors principalement lieu dans un chenal central. Elles impactent également le transport d'un soluté car celui-ci peut y pénétrer par diffusion et y rester piégé durant un temps long.

Les premières étapes des études ont consisté à reproduire les effets à l'échelle hydrodynamique. Ensuite, on a cherché à caractériser leur impact en fonction de nombres adimensionnels décrivant les conditions d'écoulement et de transport.

Effets inertiels dans un chenal sinusoïdal

L'objectif du chapitre 4 était de déterminer les conditions pour lesquelles les effets inertiels ont un impact significatif sur le transport. Cet impact dépend de la géométrie (par la présence de cavités assimilables à des variations d'ouverture du chenal). Il est toutefois nécessaire de conserver une géométrie simple caractérisable facilement. Nous nous sommes donc intéressés au transport d'un soluté dans un chenal sinusoïdal. Lorsque les effets inertiels sont importants, des zones de recirculation se forment dans les cavités du chenal. Les zones de recirculation sont des zones où les lignes de courants sont fermées. L'écoulement y est lent et le soluté ne peut y entrer ou sortir que par diffusion. La présence de ces zones de recirculation modifie le transport de soluté car (i) la taille du chenal principal d'écoulement se réduit, induisant des vitesses d'écoulement plus élevées et un cisaillement plus fort, (ii) lorsque le soluté entre dans la zone de recirculation (purement par diffusion), il peut y être piégé pendant une durée longue. De manière générale, lorsque les effets inertiels sont importants, le coefficient de dispersion augmente.

Les zones de recirculation grandissent avec le nombre de Reynolds, le rapport d'aspect du pore et l'amplitude de la variation d'ouverture. L'écoulement reste toutefois laminaire, mais il n'est plus réversible et ne respecte plus les conditions de l'écoulement de Stokes. Dans certaines conditions, la zone de recirculation occupe près de 75% du volume du chenal. Pour une géométrie donnée, le nombre de Reynolds est donc le paramètre clé qui définit si le régime est propice aux effets inertiels.

Après un temps caractéristique suffisamment long, le coefficient de dispersion longitudinal atteint un régime asymptotique. Ce comportement asymptotique est analogue à celui étudié par Taylor. Toutefois, la valeur du coefficient de dispersion asymptotique est différente du coefficient de dispersion de Taylor-Aris (obtenu pour un chenal constitué de deux plaques parallèles). Nous proposons une expression (équation (6.6)) qui généralise celle de Taylor et Aris :

$$D_a^\infty(Pe, Re) = D_m \left[1 + \frac{2}{105} \left(\alpha Pe^{\beta+2} \right) f(Re) \right] \quad (6.6)$$

Le coefficient de dispersion D_a^∞ devient dépendant du nombre de Reynolds par la fonction $f(Re)$. La puissance appliquée au nombre de Péclet est modifiée par l'ajout de β et le facteur multiplicatif $2/105$ est corrigé d'un facteur α . Les paramètres α et β , qui quantifient l'écart à la formule classique de Taylor-Aris, sont fonction de la géométrie de la fracture. Lorsque la géométrie tend à devenir proche de la fracture lisse, α et β tendent vers 1 et 0, respectivement, et $f(Re)$ tend vers 1 quelle que soit la valeur du nombre de Reynolds.

Pour une géométrie avec une amplitude relative des variations d'ouverture significative (le rapport entre les ouvertures maximale et minimale est de 9), les effets inertiels deviennent importants lorsque la valeur du nombre de Reynolds dépasse 20.

Effets densitaires dans une fracture lisse

L'objectif du chapitre 3 était de déterminer les conditions dans lesquelles les effets densitaires ont un impact significatif sur le transport. Pour cela, nous nous sommes intéressés au transport d'un soluté dans une fracture plane horizontale bidimensionnelle. Les équations de l'écoulement (Navier-Stokes et conservation de la masse) et du transport (ADE) sont résolues par la méthode des éléments finis. Le soluté est présent dans la fracture au temps initial et est distribué sur une fine ligne verticale. Les conditions d'écoulement et de transport peuvent être décrites par trois nombres sans dimension : le nombre de Reynolds Re , le nombre de Pe et Ar^* que nous appelons nombre d'Archimède advectif. Ce dernier est défini comme le rapport entre les ordres de grandeur des forces densitaires et des forces visqueuses. Il permet de caractériser l'intensité des effets densitaires.

Les effets densitaires induisent, aux temps courts, la chute du soluté le long de la paroi de la fracture. Près de la paroi, de la convection disperse le soluté de part et d'autre de la

ligne d'injection. La vitesse dans cette zone est également inférieure à la vitesse moyenne et le cisaillement est important. Ce processus provoque un retard du centre de masse du nuage et une dispersion plus importante. La présence du soluté induit également une modification des vitesses longitudinales. Le profil n'est plus parabolique et la dispersion longitudinale augmente. Toutefois, la convection provoquée par les effets densitaires disperse le soluté dans la direction transverse. Ce phénomène contribue à diminuer la valeur du coefficient de dispersion longitudinal et est d'autant plus important que le cisaillement est fort ($Pe \nearrow$). Enfin, le coefficient de dispersion atteint une valeur asymptotique identique à celle donnée par Taylor et Aris. Ce régime est atteint après un temps caractéristique dont l'ordre de grandeur est similaire à celui du temps $t_c = b^2/D_m$ défini par Taylor.

Les effets sont caractérisés grâce à deux temps adimensionnels : (i) le premier (τ_r) caractérise le retard du centre de masse, (ii) le second (τ_s) intègre tous les effets transitoires ayant altéré l'évolution du coefficient de dispersion. Il est mesuré comme un retard (ou une avance) par rapport au cas sans effet densitaire pour atteindre une valeur donnée de variance du champ de concentration. Aux temps longs (après que le régime asymptotique soit atteint) les deux temps adimensionnels $\tau_r(Pe, Ar^*)$ et $\tau_s(Pe, Ar^*)$ suffisent à décrire l'impact des effets densitaires sur le nuage de soluté.

Le retard du centre de masse (τ_r) augmente avec Ar^* et est faiblement dépendant du Péclet. La caractérisation de τ_s en fonction de Pe et Ar^* est plus complexe. En effet, une augmentation de Ar^* n'induit pas systématiquement une augmentation de τ_s . Pour chaque valeur de Ar^* (même les valeurs élevées), il existe une valeur limite du nombre de Péclet pour laquelle l'évolution asymptotique de la variance est identique à celle obtenue pour le cas négligeant les effets densitaires.

Nous avons déterminé que lorsque la valeur de Ar^* dépasse 50 environ, les effets densitaires existent et le soluté chute aux temps courts. Toutefois, au cours du temps, le temps de retard du nuage et la modification de la variance deviennent négligeables par rapport au temps de transport et à la valeur de la variance, respectivement. Plus spécifiquement, tant que le temps est du même ordre de grandeur que le temps caractéristique du régime asymptotique ($t_c = b^2/D_m$), l'impact des effets densitaires est significatif.

Effets densitaires dans un chenal sinusoïdal

Si on ne considère plus un chenal lisse mais un chenal d'ouverture variable, l'impact des effets densitaires peut être amplifié. L'objectif du chapitre 5 était d'étudier qualitativement comment un soluté pénétrant dans un chenal d'ouverture variable est influencé par les effets densitaires. Sous l'effet du gradient de masse volumique, un soluté suffisamment concentré peut pénétrer rapidement dans des cavités et en ressortir plus lentement (par diffusion ou par advection lente). Ces cavités peuvent faire partie d'une fracture (par

exemple, une zone hors du chenal principal d'écoulement), être constituées d'autres fractures non actives (des bras morts) ou simplement par l'espace entre les grains dans un milieu poreux.

Le point remarquable de cette étude est qu'on identifie que ce phénomène de stockage est très transitoire. Les effets densitaires ne sont présents que dans les premiers pores (tant que le volume d'injection du soluté est supérieur au volume des cavités des pores traversés). Les courbes de restitutions sont ensuite très aplaties car le soluté ressort petit à petit des cavités avec une densité beaucoup plus faible, ce qui limite leur piégeage dans d'autres pores.

Perspectives

En premier lieu, il conviendrait de tester les limites de validité de l'approximation 2D des modèles. D'un point de vue physique, la dispersion d'un soluté peut être longitudinale, transverse dans le sens de l'ouverture du chenal ou transverse dans la 3^{ème} dimension. Nous avons fait l'hypothèse que ce sont les deux premiers mécanismes qui provoquent les effets principaux car (i) le type de géométrie du chenal les rend interdépendant (ii) leur moteur principal est l'advection. Par exemple, dans un chenal lisse, le seul processus de dispersion dans la 3^{ème} dimension est la diffusion. Ce n'est plus totalement vrai lorsque des effets densitaires entrent en jeu, mais c'est leur interaction avec l'advection qui nous intéresse. La quantification des limites de validité de l'approximation 2D être réalisée en étudiant le transport dans les mêmes conditions dans un domaine tridimensionnel. Toutefois, lorsqu'on s'intéresse au régime asymptotique du transport à l'échelle hydrodynamique, un des problèmes principaux est que la dimension dans la direction de l'écoulement est beaucoup plus grande que la dimension transverse. Les méthodes lagrangiennes permettent d'effectuer ce passage sans que les besoins en mémoire n'augmentent significativement, et le choix d'une géométrie périodique permet de résoudre l'écoulement dans un domaine assez petit. Pour étudier les effets densitaires, il est nécessaire de résoudre le transport et l'écoulement simultanément. Avec la méthode des éléments finis, si l'on souhaite garder une bonne précision dans la direction transverse et avoir un maillage régulier, le nombre d'éléments devient vite très conséquent. Le calcul en trois dimensions nécessite alors des ressources importantes. D'autres méthodes numériques (par exemple, la méthode « Smoothed Particle Hydrodynamics » (SPH)) sont elles plus ou moins efficaces pour résoudre le transport avec effets densitaires ?

Une deuxième piste à suivre est celle de la représentativité des géométries simplifiées. Si ces dernières permettent une première analyse des effets, il devient ensuite nécessaire de se rapprocher des cas réels. On a vu que les effets densitaires sont sensibles aux conditions d'injection ainsi qu'à la géométrie du milieu. Les modèles à fractures lisses capturent-ils l'essentiel de la phénoménologie, ou la rugosité des parois (plus particulièrement, les

fluctuations de dimensions bien inférieures à celle de l'ouverture du chenal) joue-t-elle un rôle important ? La réponse pourrait être apportée par des modèles expérimentaux, qu'ils utilisent des milieux géologiques réels ou des géométries en reproduisant certaines particularités.

Une des principales difficultés lors des interprétations d'essais de traçage est que les impacts de tous les effets affectant le transport sont confondus dans peu d'observables. Une courbe de restitution contient des informations intégrant tous les effets. Il est alors très difficile de déterminer si une queue de restitution longue provient d'effets densitaires, inertiels ou si elle est simplement héritée d'une injection mal contrôlée (typiquement, parce que le soluté subit également des effets densitaires dans le puits d'injection, sa distribution est alors très éloignée d'un Dirac, un créneau ou une Gaussienne). Si on souhaite discriminer les effets densitaires, il est indispensable d'avoir un dispositif permettant de mesurer sa distribution lors de l'injection. De plus, le modèle conceptuel abordé dans le chapitre 4 mérite d'être développé pour apporter un outil simple de prédiction. Il pourrait également être étendu pour prendre en compte également les effets densitaires.

Enfin, les géométries périodiques sont très intéressantes car, sous certaines conditions, on peut décrire tout le transport grâce à ce qui se passe dans une cellule. Par exemple, on peut mesurer la distribution des vitesses de transport des particules de soluté entre l'entrée et la sortie de chaque cellule. On peut également mesurer la probabilité qu'une particule située à une position donnée en entrée soit à une autre position donnée sortie. Comme l'ont montré *Le Borgne et al.* (2011a), ces deux informations sont suffisantes pour modéliser le transport à une échelle supérieure en utilisant l'approche de « continuous time random walk » (CTRW). Les auteurs ont étudié une géométrie sinusoïdale périodique dans les conditions d'écoulement de Stokes, il est prévu d'étendre la théorie aux conditions avec effets inertiels. Il est aussi tout à fait envisageable d'utiliser la même approche avec des effets densitaires, les statistiques dépendront alors également du temps et des conditions d'injection.

Bibliographie

- Abarca, E., J. Carrera, X. Sánchez-Vila, and M. Dentz, Anisotropic dispersive Henry problem, *Advances in Water Resources*, 30(4), 913–926, doi :10.1016/j.advwatres.2006.08.005, 2007a.
- Abarca, E., J. Carrera, X. Sánchez-Vila, and C. I. Voss, Quasi-horizontal circulation cells in 3d seawater intrusion, *J. Hydrol.*, 339, 118–129, 2007b.
- Andersson, P., J. Byegård, E.-L. Tullborg, T. Doe, J. Hermanson, and A. Winberg, In situ tracer tests to determine retention properties of a block scale fracture network in granitic rock at the Aspö Hard Rock Laboratory, Sweden., *Journal of contaminant hydrology*, 70(3-4), 271–97, doi :10.1016/j.jconhyd.2003.09.009, 2004.
- Aris, R., On the Dispersion of a Solute in a Fluid Flowing through a Tube, *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 235(1200), 67–77, doi :10.1098/rspa.1956.0065, 1956.
- Barton, N. G., The dispersion of a buoyant solute in laminar flow in a straight horizontal pipe. part 1. predictions from erdogan & chatwin’s (1967) paper, *J. Fluid. Mech.*, 74, 81–89, 1976a.
- Barton, N. G., The dispersion of a buoyant solute in laminar flow in a straight horizontal pipe. part 2. the approach to the asymptotic state, *J. Fluid. Mech.*, 74, 91–112, 1976b.
- Barton, N. G., On the method of moments for solute dispersion, *J. Fluid. Mech.*, 126, 205–218, 1983.
- Bear, J., *Dynamics of fluids in porous media*, elsevier ed., Dover publications, 1972.
- Becker, M. W., Effect of tracer buoyancy on tracer experiments conducted in fractured crystalline bedrock, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 1116, 2003.
- Beinhorn, M., P. Dietrich, and O. Kolditz, 3-D numerical evaluation of density effects on tracer tests, *Journal of contaminant hydrology*, 81(1-4), 89–105, doi :10.1016/j.jconhyd.2005.08.001, 2005.

- Berkowitz, B., and J. Zhou, Reactive solute transport in a single fracture, *Water Resources*, 32(4), 901–913, 1996.
- Bolster, D., M. Dentz, and J. Carrera, Effective two-phase flow in heterogeneous media under temporal pressure fluctuations, *Water Resources Research*, 45(5), 1–14, doi : 10.1029/2008WR007460, 2009a.
- Bolster, D., M. Dentz, and T. Le Borgne, Solute dispersion in channels with periodically varying apertures, *Physics of Fluids*, 21(5), 056,601, doi :10.1063/1.3131982, 2009b.
- Bolster, D., F. J. Valdés-Parada, T. Le Borgne, M. Dentz, and J. Carrera, Mixing in confined stratified aquifers., *Journal of contaminant hydrology*, 120-121, 198–212, doi : 10.1016/j.jconhyd.2010.02.003, 2011.
- Borgne, T. L., M. Dentz, D. Bolster, J. Carrera, J.-R. de Dreuzy, and P. Davy, Non-Fickian mixing : Temporal evolution of the scalar dissipation rate in heterogeneous porous media, *Advances in Water Resources*, 33(12), 1468–1475, doi :10.1016/j.advwatres.2010.08.006, 2010.
- Bouquain, J., Y. Meheust, and P. Davy, Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts., *Journal of contaminant hydrology*, 120-121, 184–97, doi :10.1016/j.jconhyd.2010.08.002, 2011.
- Brenner, H., Dispersion Resulting from Flow through Spatially Periodic Porous Media, *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 297(1430), 81–133, doi :10.1098/rsta.1980.0205, 1980.
- Brown, S. R., Simple mathematical model of a rough fracture, *Journal of Geophysical Research*, 100(B4), 5941–5952, 1995.
- Cardenas, M. B., Direct simulation of pore level Fickian dispersion scale for transport through dense cubic packed spheres with vortices, *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 10(12), doi :10.1029/2009GC002593, 2009.
- Cardenas, M. B., D. T. Slottke, R. A. Ketcham, and J. M. Sharp, Effects of inertia and directionality on flow and transport in a rough asymmetric fracture, *Journal of Geophysical Research*, 114(B6), doi :10.1029/2009JB006336, 2009.
- Carrera, J., X. Sánchez-Vila, I. Benet, A. Medina, G. Galarza, and J. Guimerà, On matrix diffusion : formulations, solution methods and qualitative effects, *Hydrogeology Journal*, 6(1), 178–190, 1998.
- Chatwin, P. C., The approach to normality of the concentration distribution of a solute in a solvent flowing along a straight pipe, *J. Fluid. Mech.*, 43(2), 321–352, 1970.

Bibliographie

- Chatwin, P. C., The initial dispersion of contaminant in poiseuille flow and the smoothing of the snout, *J. Fluid. Mech.*, 77(3), 593–602, 1976.
- Chatwin, P. C., The initial development of longitudinal dispersion in straight tubes, *J. Fluid. Mech.*, 80(1), 33–48, 1977.
- Chaudhary, K., M. B. Cardenas, W. Deng, and P. C. Bennett, The role of eddies inside pores in the transition from Darcy to Forchheimer flows, *Geophys. Res. Lett.*, 38(24), 2011.
- Comsol Multiphysics, Comsol Multiphysics Website.
- Dagan, G., and A. Fiori, The influence of pore-scale dispersion on concentration statistical moments in transport through heterogeneous aquifers, *Water Resources Research*, 33(7), 1595, doi :10.1029/97WR00803, 1997.
- d’Angelo, M. V., H. Auradou, C. Allain, M. Rosen, and J.-P. Hulin, Dispersion enhancement and damping by buoyancy driven flows in two-dimensional networks of capillaries, *Phys. Fluids*, 20, 034,107, 2008.
- Darcy, H., Les fontaines publiques de la ville de Dijon, *Dalmont, Paris*, 1856.
- De Anna, P., Mixing and reaction in porous media, Ph.D. thesis, 2012.
- Delay, F., P. Ackerer, and C. Danquigny, Simulating Solute Transport in Porous or Fractured Formations Using Random Walk Particle Tracking, *Vadose Zone Journal*, 4(2), 360, doi :10.2136/vzj2004.0125, 2005.
- Dentz, M., and J. Carrera, Mixing and spreading in stratified flow, *Physics of Fluids*, 19(1), 017,107, doi :10.1063/1.2427089, 2007.
- Donado, L. D., X. Sanchez-Vila, M. Dentz, J. Carrera, and D. Bolster, Multicomponent reactive transport in multicontinuum media, *Water Resources Research*, 45(11), doi : 10.1029/2008WR006823, 2009.
- Drazer, G., H. Auradou, J. Koplik, and J. P. Hulin, Self-Affine Fronts in Self-Affine Fractures : Large and Small-Scale Structure, *Physical Review Letters*, 92(1), doi : 10.1103/PhysRevLett.92.014501, 2004.
- Dykaar, B. B., and P. K. Kitanidis, Macrotransport of a Biologically Reacting Solute Through Porous Media, *Water Resources Research*, 32(2), 307, doi :10.1029/95WR03241, 1996.
- Edwards, D., M. Shapiro, H. Brenner, and M. Shapira, Dispersion of inert solutes in spatially periodic, two-dimensional model porous media, *Transport in Porous Media*, 6(4), 337–358, doi :10.1007/BF00136346, 1991.

- Einstein, A., *Investigations on the theory of the Brownian movement*, dover publ ed., 1956.
- England, P., and D. P. McKenzie, A thin viscous sheet model for continental deformation, *Geophys. J. R. Astron. Soc.*, *70*, 295–321, 1982.
- Erdogan, M. E., and P. C. Chatwin, The effects of curvature and buoyancy on the laminar dispersion of solute in a horizontal tube, *J. Fluid Mech*, *29*, 465–484, 1967.
- Fetter, C. W., *Contaminant hydrogeology*, prentice h ed., 2001.
- Fiori, A., On the influence of pore-scale dispersion in nonergodic transport in heterogeneous formations, *Transport in porous media*, pp. 57–73, doi :10.1023/A:1006548529015, 1998.
- Flowers, T. C., and J. R. Hunt, Viscous and gravitational contributions to mixing during vertical brine transport in water-saturated porous media, *Water Resour. Res.*, *43*, W01,407, 2007.
- Forrester, J. H., and D. F. Young, Flow through a converging-diverging tube and its implications in occlusive vascular disease - II, *Journal of Biomechanics*, *3*(3), 307–316, doi :10.1016/0021-9290(70)90032-1, 1970a.
- Forrester, J. H., and D. F. Young, Flow through a converging-diverging tube and its implications in occlusive vascular disease - I, *Journal of Biomechanics*, *3*(3), 297–305, doi :10.1016/0021-9290(70)90031-X, 1970b.
- Garcia, J., and K. Pruess, Flow instabilities during injection of CO₂ into saline aquifers, in *Proceedings, Tough Symposium 2003*, 2003.
- Gelhar, L. W., Stochastic subsurface hydrology from theory to applications, *Water Resources Research*, *22*(9S), 135S, doi :10.1029/WR022i09Sp0135S, 1986.
- Gill, W. N., and R. Sankarasubramanian, Exact Analysis of Unsteady Convective Diffusion, *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, *316*(1526), 341–350, doi :10.1098/rspa.1970.0083, 1970.
- Graf, T., and R. Therrien, Variable-density groundwater flow and solute transport in porous media containing nonuniform discrete fractures, *Advances in water resources*, *28*(12), 1351–1367, doi :10.1016/j.advwatres.2005.04.011, 2005.
- Haggerty, R., and S. M. Gorelick, Multiple-Rate Mass Transfer for Modeling Diffusion and Surface Reactions in Media with Pore-Scale Heterogeneity, *Water Resources Research*, *31*(10), 2383, doi :10.1029/95WR10583, 1995.

Bibliographie

- Hasegawa, E., and H. Izuchi, On Steady Flow through a Channel Consisting of an Uneven Wall and a Plane Wall : Part 1. Case of No Relative Motion in Two Walls, *Bulletin of JSME*, 1983.
- Hellström, J., and T. Lundström, Flow through porous media at moderate Reynolds number, *International Scientific Colloquium : Modelling for Material Processing*, (2), 129–134, 2006.
- Hoagland, D. A., and R. K. Prud'Homme, Taylor-aris dispersion arising from flow in a sinusoidal tube, *AIChE Journal*, 31(2), 236–244, doi :10.1002/aic.690310210, 1985.
- Kang, P. K., T. Le Borgne, O. Bour, M. Dentz, and R. Juanes, Origin of Anomalous Transport through Fractured Media : Modeling and Observations from a Field Test in Fractured Granite., in *American Geophysical Union*, 2011.
- Kitanidis, P. K., The concept of the dilution index, *Water resources research*, 30(7), 2011–2026, 1994.
- Kitanidis, P. K., and B. B. Dykaar, Stokes flow in a slowly varying two-dimensional periodic pore, *Transport in porous media*, pp. 89–98, 1997.
- Koch, D., and J. Brady, A non-local description of advection-diffusion with application to dispersion in porous media, *Journal of Fluid Mechanics*, 180(1), 387–403, doi : 10.1017/S0022112087001861, 1987a.
- Koch, D. L., and J. F. Brady, The symmetry properties of the effective diffusivity tensor in anisotropic porous media, *Physics of Fluids*, 30(3), 642, doi :10.1063/1.866368, 1987b.
- Latini, M., and A. Bernoff, Transient anomalous diffusion in Poiseuille flow, *Journal of Fluid Mechanics*, 441, 399–411, 2001.
- Le Borgne, T., D. Bolster, M. Dentz, P. de Anna, and A. Tartakovsky, Effective pore-scale dispersion upscaling with a correlated continuous time random walk approach, *Water Resources Research*, 47(12), 1–10, doi :10.1029/2011WR010457, 2011a.
- Le Borgne, T., M. Dentz, P. Davy, D. Bolster, J. Carrera, J.-R. de Dreuzy, and O. Bour, Persistence of incomplete mixing : A key to anomalous transport, *Physical Review E*, 84(1), 015,301—, doi :10.1103/PhysRevE.84.015301, 2011b.
- Locascio, L. E., Microfluidic mixing., *Analytical and bioanalytical chemistry*, 379(3), 325–7, doi :10.1007/s00216-004-2630-1, 2004.
- Lucas, Y., M. Panfilov, and M. Bues, High velocity flow through fractured and porous media : the role of flow non-periodicity, *European Journal of Mechanics - B/Fluids*, 26(2), 295–303, doi :10.1016/j.euromechflu.2006.04.005, 2007.

- Masuoka, T., Y. Takatsu, and T. Inoue, Chaotic behavior and transition to turbulence in porous media, *Microscale Thermophysical Engineering*, 6(4), 347–357, doi :10.1080/10893950290098377, 2002.
- Meigs, L. C., and R. L. Beauheim, Tracer tests in a fractured dolomite : 1. Experimental design and observed tracer recoveries, *Water Resources Research*, 37(5), 1113, doi : 10.1029/2000WR900335, 2001.
- Michel, L., Thèse Transport en fracture et interaction avec la matrice : une expérience analogique, Ph.D. thesis, Université de Rennes 1, 2009.
- Novakowski, K., G. Bickerton, P. Lapcevic, J. Voralek, and N. Ross, Measurements of groundwater velocity in discrete rock fractures, *Journal of contaminant*, 82, 44 – 60, doi :10.1016/j.jconhyd.2005.09.001, 2006.
- Novakowski, K. S., G. Bickertno, and P. Lapcevic, Interpretation of injection-withdrawal tracer experiments conducted between two wells in a large single fracture, *J. Contam. Hydrol.*, 73, 227–247, 2004.
- Reejhsinghani, N. S., W. N. Gill, and A. J. Barduhn, Experiments in horizontal tubes including observations, *A.I.Ch.E. J.*, 12, 916, 1962.
- Risken, H., *The Fokker-Plank equation : methods of solutions and applications*, springer ed., 1996.
- Rosencrans, S., Taylor Dispersion in Curved Channels, *SIAM Journal on Applied Mathematics*, 57(5), 1216, doi :10.1137/S003613999426990X, 1997.
- Roth, K., *Soil Physics. Lecture Notes.*, Institute of Environmental Physics, University of Heidelberg, 2007.
- Salles, J., J.-F. Thovert, R. Delannay, L. Prevors, J.-L. Auriault, and P. M. Adler, Taylor dispersion in porous media. Determination of the dispersion tensor, *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 5(10), 2348, doi :10.1063/1.858751, 1993.
- Shikaze, S. G., E. Sudicky, and F. Schwartz, Density-dependent solute transport in discretely-fractured geologic media : is prediction possible?, *Journal of Contaminant Hydrology*, 34(3), 273–291, doi :10.1016/S0169-7722(98)00080-1, 1998.
- Simmons, C. T., Variable density groundwater flow : From current challenges to future possibilities, *Hydrogeology Journal*, 13(1), 116–119, doi :10.1007/s10040-004-0408-3, 2005.
- Smith, R., Longitudinal dispersion of a buoyant contaminant in a shallow channel, *J. Fluid. Mech.*, 78, 677–688, 1976.

Bibliographie

- Smith, R., Asymptotic solutions of the erdogan-chatwin equation, *J. Fluid. Mech.*, 88, 323–337, 1978.
- Smith, R., Buoyancy effects upon lateral dispersion in open-flow channel, *J. Fluid. Mech.*, 78, 761–779, 1990.
- Stokes, A. N., and N. G. Barton, The concentration distribution produced by shear dispersion of solute in poiseuille flow, *J. Fluid. Mech.*, 210, 201–221, 1990.
- Tartakovsky, D. M., and D. Xiu, Stochastic analysis of transport in tubes with rough walls, *Journal of Computational Physics*, 217(1), 248–259, doi :10.1016/j.jcp.2006.02.029, 2006.
- Taylor, G., Conditions under which dispersion of a solute in a stream of solvent can be used to measure molecular diffusion, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, 225(1163), 473–477, 1954a.
- Taylor, G. I., Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 219(1137), 186, 1953.
- Taylor, G. I., Diffusion and Mass Transport in Tubes, *Proceedings of the Physical Society. Section B*, 67(12), 857–869, doi :10.1088/0370-1301/67/12/301, 1954b.
- Taylor, G. I., Conditions under which dispersion of a solute in a stream of solvent can be used to measure molecular diffusion, *Proc. R. Soc. Lond. A*, 225(1163), 473–477, 1954c.
- Taylor, G. I., The dispersion of matter in turbulent flow through a pipe, *Proc. R. Soc. Lond. A*, 223, 446–468, 1954d.
- Tenchine, S., and P. Gouze, Density contrast effects on tracer dispersion in variable aperture fractures, *Adv. Water Resour.*, 28, 273–289, 2005.
- Tripathi, A., O. Bozkurt, and A. Chauhan, Dispersion in microchannels with temporal temperature variations, *Physics of Fluids*, 17(10), 103,607, doi :10.1063/1.2115007, 2005.
- Van Kampen, N. G., *Stochastic processes in physics and chemistry*, elsevier ed., 1981.
- Werth, C. J., O. a. Cirpka, and P. Grathwohl, Enhanced mixing and reaction through flow focusing in heterogeneous porous media, *Water Resources Research*, 42(12), 1–10, doi :10.1029/2005WR004511, 2006.

- Whitaker, S., Flow in porous media I : A theoretical derivation of Darcy's law, *Transport in porous media*, 1, 3–25, 1986.
- White, F. M., *Viscous fluid flow*, mcgraw-hil ed., 1974.
- Wooding, R., Instability of a viscous liquid of variable density in a vertical Hele-Shaw cell, *J. Fluid Mech*, 7(04), 501, doi :10.1017/S0022112060000256, 1960.
- Xiu, D., and D. M. Tartakovsky, Numerical Methods for Differential Equations in Random Domains, *SIAM Journal on Scientific Computing*, 28(3), 1167, doi :10.1137/040613160, 2006.
- Ye, H., D. B. Das, J. T. Triffitt, and Z. Cui, Modelling nutrient transport in hollow fibre membrane bioreactors for growing three-dimensional bone tissue, *Journal of Membrane Science*, 272(1-2), 169–178, doi :10.1016/j.memsci.2005.07.040, 2006.
- Zavala-Sanchez, V., M. Dentz, and X. Sanchez-Vila, Characterization of mixing and spreading in a bounded stratified medium, *Advances in Water Resources*, 32(5), 635–648, doi :10.1016/j.advwatres.2008.05.003, 2009.
- Zimmerman, R., S. Kumar, and G. Bodvarsson, Lubrication theory analysis of the permeability of rough-walled fractures, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, 28(4), 325–331, doi :10.1016/0148-9062(91)90597-F, 1991.

Table des figures

1.1	Schéma des différentes lithologies et des types de porosité sur le site de Culebra (USA) d'après <i>Meigs and Beauheim</i> (2001).	6
1.2	Schéma conceptuel d'une fracture dans la diorite d'Äspö d'après <i>Andersson et al.</i> (2004).	7
1.3	Transition de l'échelle microscopique (l'échelle du pore) à la représentation continue (macroscopique) d'après <i>Roth</i> (2007). On considère un volume V dont la frontière est ∂V . A l'échelle microscopique, la distribution détaillée des phases est complète. Le volume d'eau $V_w \subset V$ a pour limites $\partial V_w \subset \partial V$ (représentées par les lignes rouges). A l'échelle macroscopique, toutes les phases et toute autre information sont remplacées par une superposition de champs continus (zones de couleur uniforme). Les valeurs des champs varient dans l'espace uniquement à une échelle supérieure à la taille de V	8
1.4	Schéma du modèle de fracture plane constituée de deux plaques parallèles. Le fluide s'écoule selon la direction x . b est la demi-ouverture et $z = 0$ à l'équidistance des deux plaques. Les deux plaques sont donc placées à $z = b$ et $z = -b$	10
1.5	Lignes d'écoulement dans un chenal 2D sinusoïdal, d'après <i>Kitanidis and Dykaar</i> (1997).	13
1.6	Evolution temporelle d'une ligne de soluté par advection pure lorsque le champ de vitesse (indiqué par les flèches grises) est uniforme (ligne supérieure) et lorsque celui-ci est non-uniforme (ligne inférieure).	15
1.7	Diffusion 1D d'un soluté au cours du temps, d'après <i>Fetter</i> (2001).	17
1.8	Advection pure d'une particule dans un milieu poreux. En (a), le chemin de la particule est représenté en rouge et le champ de vitesse du vert au jaune pour des vitesses de la plus faible à la plus élevée, respectivement. En (b), évolution de la norme de la vitesse de la particule le long de sa trajectoire entre sa première et sa dernière position. D'après les travaux de <i>De Anna</i> (2012).	20
1.9	Spreading et mixing dans une fracture lisse. Au temps initial, le soluté est injecté sur une ligne verticale. D'après <i>Dentz and Carrera</i> (2007).	21

1.10	Diffusion et étirement par advection d'une ligne de soluté	24
1.11	Evolution pré-asymptotique de la valeur du coefficient de dispersion calculé à partir de la solution analytique (équ. 1.38) ainsi que par une méthode numérique. Les encarts sont des exemples de champs de concentration visibles aux temps courts et longs. τ est le temps adimensionné par t_c (i.e. $\tau = t/t_c$). D'après <i>Bouquain et al.</i> (2011), l'article est en annexe du chapitre 3.	24
1.12	Evolution spatiale d'un nuage de soluté après son injection dans un puits recoupant un milieu poreux homogène.(a) isosurfaces de la concentration $0,025\text{g.L}^{-1}$ et (b) coupe longitudinale du champ de concentration. L'injection de soluté est de $3,6\text{ kg/h}$ pendant 1h . D'après <i>Beinhorn et al.</i> (2005).	25
2.1	Schéma d'un système 1D de longueur L discrétisé en $N - 1$ éléments de 2 nœuds chacun.	32
2.2	Exemple de maillage 2D par des triangles. Les niveaux de couleurs représentent la concentration au temps initial. Les éléments sont les plus fins au niveau de l'injection afin d'obtenir une meilleure précision aux temps courts.	33
3.1	(a) Section du champ de vitesse transverse à l'écoulement dans une fracture 3D de section rectangulaire d'ouverture $2b$ et de largeur L_y avec $L_y = 5 \times 2b$. (b) et (c) : profils vertical et horizontal (respectivement) de la carte de vitesse (a). L'écoulement s'effectue dans la direction x . La vitesse est normalisée par la vitesse maximale.	39
3.2	Conditions aux limites et conditions initiales du modèle.	39
3.3	Evolution du champ de concentration dans le temps avec effets densitaires. τ est défini par $\tau = t/t_c$ (voir équ. 1.35 page 22). $Re = 2,5$, $Pe = 250$ et $Ar^* = 240$	42
3.4	Evolution du champ de concentration dans le temps avec effets densitaires. τ est défini par $\tau = t/t_c$ (voir équ. 1.35 page 22). $Re = 2,5$, $Pe = 250$ et $Ar^* = 1920$	44
3.5	Evolution temporelle du coefficient de dispersion apparente D_a . En A, $Re = 2,5$ et $Pe = 50$ et en B, $Re = 2,5$ et $Pe = 250$. D'après la figure 8 de l'article en annexe du chapitre.	45
3.6	Valeur du nombre de Péclet limite obtenue pour 3 valeurs de Ar^* , avec $Re = 0,5$	47
4.1	Géométrie d'un chenal d'ouverture sinusoïdale à deux dimensions (cf équation (4.1)).	66
4.2	Géométrie 3D d'un pore idéalisé dans un milieu poreux, d'après <i>Chaudhary et al.</i> (2011).	67

4.3	Géométrie 3D d'un pore idéalisé dans un milieu poreux, d'après <i>Chaudhary et al.</i> (2011).	69
4.4	Les niveaux de couleurs représentent la composante transverse de la vitesse d'écoulement, v normalisée par la vitesse moyenne d'advection longitudinale (\bar{u}). Le fluide s'écoule de gauche à droite. Les lignes d'écoulement sont représentées en gris. La géométrie est définie par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$. En A $Re = 0,1$, en B $Re = 10$, en C $Re = 20$ et en D $Re = 100$	74
4.5	Position selon x du barycentre de la zone de recirculation pour une plage de nombre de Reynolds. La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$. $2x_{zr}/L = 0$ au milieu du pore et $2x_{zr}/L = \pm 1$ au niveau des entrée et sortie du pore. En gris, la zone de recirculation n'est pas encore apparue (à $Re = 0,1$).	75
4.6	Volume relatif de la zone de recirculation ϕ (en niveaux de couleur) en fonction du nombre de Reynolds et de la variation relative d'ouverture a . La ligne en pointillés gris représente la courbe d'isovaleur 10%, en dessous de laquelle le transport est très peu impacté par la présence de la zone de recirculation. Extrait de la figure 3 de l'article en annexe du chapitre.	76
4.7	Champ de concentration illustrant le chemin emprunté par le soluté pour entrer dans une zone de recirculation très développée (identique à celle visible en figure 4.4D). La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement et le transport par $Re = 100$ et $Pe = 250$	76
4.8	Champ de concentration (en niveaux de couleur), du profil de la masse de soluté cumulée verticalement et du profil de concentration moyennée verticalement ($\bar{C}(x,t) = M(x,t)/h(x)$). La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement par $Re = 1$ (colonne gauche) et $Re = 100$ (colonne droite) et le transport par $Pe = 50$	77
4.9	Champ de concentration (en niveaux de couleur), du profil de la masse de soluté cumulée verticalement et du profil de concentration moyennée verticalement ($\bar{C}(x,t) = M(x,t)/h(x)$). La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement par $Re = 1$ (colonne gauche) et $Re = 100$ (colonne droite) et le transport par $Pe = 50$	78
4.10	Evolution temporelle de la masse de soluté piégée dans les zones de recirculation normalisée par la masse totale. La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement et le transport par $Re = 100$ et $Pe = 250$	80

4.11	(A) Evolution de la masse relative piégée dans les zones de recirculation en fonction du numéro du pore $n_{Z.R.}$ pour différents temps τ . (B) Evolution de la masse relative piégée dans les zones de recirculation en fonction du temps τ pour plusieurs pores de numéro $n_{Z.R.}$. La relation entre la plage de position $x_{Z.R.}$ du pore et son numéro $n_{Z.R.}$ est : $L(n_{Z.R.} - 1) \geq x_{Z.R.} \geq L n_{Z.R.}$. La géométrie est caractérisée par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$, l'écoulement et le transport par $Re = 100$ et $Pe = 250$	81
4.12	Coefficient de dispersion asymptotique normalisé en fonction de Re pour plusieurs valeurs de Pe (A). En (B) les mêmes courbes sont rassemblées en appliquant à chacune un coefficient de proportionnalité κ . L'insert dans (B) montre la relation entre κ et Pe . Les paramètres de la géométrie sont $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$	82
4.13	A gauche : profil vertical de vitesse longitudinale au niveau des pointillés blancs. A droite : champ de la composante longitudinale de la vitesse d'écoulement en niveaux de couleur et lignes d'écoulement en gris. La géométrie est définie par $\varepsilon = 0,47$ et $a = 0,4$	83
5.1	Cartes du champ de concentration lors du transport d'un soluté avec effets densitaires pour 3 temps adimensionnels $\tau = t\bar{u}/L$. $Pe = 100$, $Re = 0,05$ et $Ar^* = 858$ ($C_0 = 35 \text{ g.L}^{-1}$).	113
5.2	Courbes de restitution à la position $x = L$ (i.e. à la sortie du premier pore) pour plusieurs concentration d'injection C_0 . τ est défini par $\tau = t\bar{u}/L$. L'écoulement et le transport sont caractérisés respectivement par $Re = 0,05$ et $Pe = 100$	114
5.3	Courbes de restitution pour deux concentrations d'injection C_0 et à deux positions (à la sortie du premier pore et à la sortie du second pore). τ est défini par $\tau = t\bar{u}/L$. L'écoulement et le transport sont caractérisés respectivement par $Re = 0,05$ et $Pe = 100$	114
6.1	Relation entre la vitesse moyenne d'écoulement \bar{u} et la demi-ouverture d'une fracture pour deux valeurs de gradient de charge (10% et 40%).	118
6.2	Résumé des conditions dans lesquelles les différentes typologie des effets densitaires et inertiels peuvent être rencontrées.	120

VU :

Le Directeur de Thèse
(DAVY, Philippe)

VU :

Le Responsable de l'École Doctorale

DAVY Philippe

VU pour autorisation de soutenance

Rennes, le

Le Président de l'Université de Rennes 1

Guy CATHELINEAU

VU après soutenance pour autorisation de publication :

Le Président de Jury,